

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 3 年    6 月 3 0 日  
Date of Application:

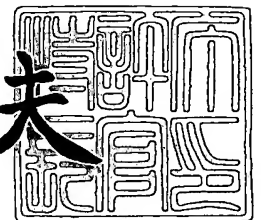
出 願 番 号                      特 願 2 0 0 3 - 1 8 8 9 6 0  
Application Number:  
[ST. 10/C]:                      [ J P 2 0 0 3 - 1 8 8 9 6 0 ]

出      願      人                      株式会社半導体エネルギー研究所  
Applicant(s):

2 0 0 3 年 1 2 月 2 2 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号    出証特 2 0 0 3 - 3 1 0 6 3 7 2

【書類名】 特許願

【整理番号】 P007228

【提出日】 平成15年 6月30日

【あて先】 特許庁長官 殿

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

【氏名】 瀬尾 哲史

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

【氏名】 井上 英子

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

【氏名】 徳田 篤史

【特許出願人】

【識別番号】 000153878

【氏名又は名称】 株式会社半導体エネルギー研究所

【代表者】 山崎 舜平

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2003- 35969

【出願日】 平成15年 2月14日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 002543

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1  
【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

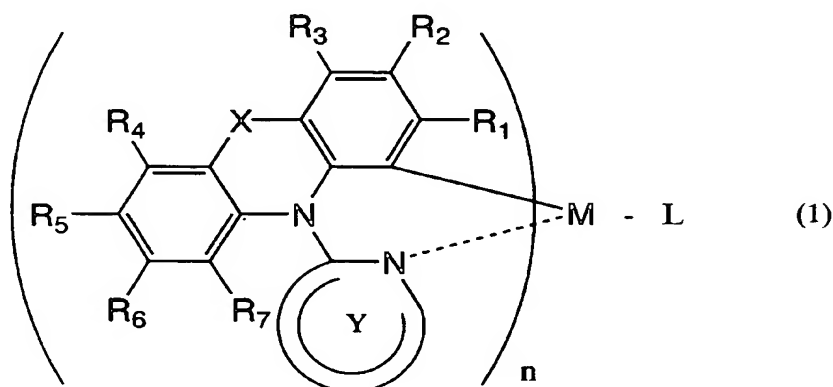
【発明の名称】 有機金属錯体および前記錯体を用いた電界発光素子

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式 (1) で表される有機金属錯体。

【化 1】



(R1～R7はそれぞれ同一でも異なっても良く、水素原子、またはハロゲン原子、または低級アルキル基、またはアルコキシ基、またはアシル基、またはニトロ基、またはシアノ基、またはアミノ基、またはジアルキルアミノ基、またはジアリールアミノ基、または置換基を有してもよいビニル基、または置換基を有してもよいアリール基、または置換基を有してもよい複素環残基、のいずれかを表す。また、R1とR2、R2とR3、R4とR5、R5とR6はそれぞれ互いに結合し、芳香族環を形成してもよい。またXは、酸素原子または硫黄原子を表す。またYは、窒素原子をヘテロ原子として含む複素環残基を表す。またMは、第9族原子または第10族原子を表し、前記Mが第9族原子の場合は $n=2$ 、第10族原子の場合は $n=1$ となる。またLは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれかを表す。)

【請求項 2】

前記Yが5員環または6員環からなる複素環残基であることを特徴とする請求

項 1 に記載の有機金属錯体。

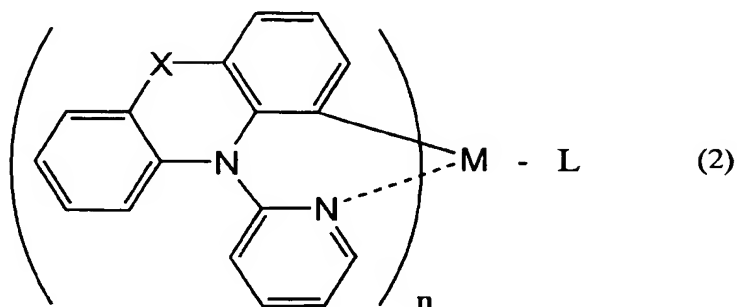
【請求項 3】

前記 Y が 2-ピリジル基であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機金属錯体。

【請求項 4】

下記一般式 (2) で表される有機金属錯体。

【化 2】



(Xは、酸素原子または硫黄原子を表す。またMは、第9族原子または第10族原子を表し、前記Mが第9族原子の場合は $n=2$ 、第10族原子の場合は $n=1$ となる。またLは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれかを表す。)

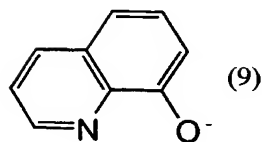
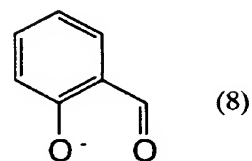
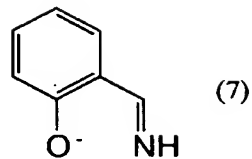
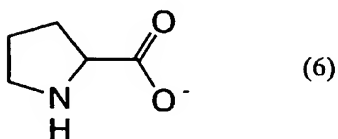
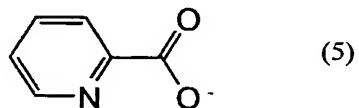
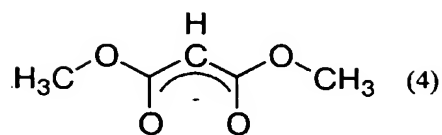
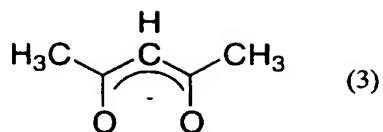
【請求項 5】

前記Mがイリジウム原子または白金原子であることを特徴とする請求項 1 乃至請求項 4 に記載の有機金属錯体。

【請求項 6】

請求項 1 乃至請求項 5 に記載の有機金属錯体において、前記Lは、下記構造式 (3) 乃至 (9) に示すモノアニオン性の二座キレート配位子のいずれかであることを特徴とする有機金属錯体。

## 【化 3】



## 【請求項 7】

請求項 1 乃至請求項 6 のいずれか一項に記載の有機金属錯体を用いたことを特徴とする電界発光素子。

## 【請求項 8】

請求項 1 乃至請求項 6 のいずれか一項に記載の有機金属錯体を、発光体として用いたことを特徴とする電界発光素子。

## 【請求項 9】

請求項 7 または請求項 8 に記載の電界発光素子を用いたことを特徴とする発光装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する分野】

本発明は、新規な有機金属錯体に関する。特に、三重項励起状態を発光に変換できる有機金属錯体に関する。また本発明は、陽極と、陰極と、電界を加えることで発光が得られる有機化合物を含む層（以下、「電界発光層」と記す）と、を有する電界発光素子であって、前記有機金属錯体を用いた電界発光素子に関する。

#### 【0002】

##### 【従来の技術】

有機化合物（有機分子）は、光を吸収するとエネルギーを持った状態（励起状態）となる。この励起状態を経由することにより、種々の反応（光化学反応）を起こす場合や発光（ルミネッセンス）を生じる場合があり、様々な応用がなされている。

#### 【0003】

光化学反応の一例として、一重項酸素の不飽和有機分子との反応（酸素付加）がある（例えば、非特許文献1参照）。酸素分子は基底状態が三重項状態であるため、一重項状態の酸素（一重項酸素）は直接の光励起では生成しない。しかしながら、他の三重項励起分子の存在下においては一重項酸素が生成し、酸素付加反応に至ることができる。この時、前述の三重項励起分子を形成できる化合物は、光増感剤と呼ばれる。

#### 【0004】

##### 【非特許文献1】

井上晴夫、外3名、基礎化学コース 光化学I（丸善株式会社）、106-110

#### 【0005】

このように、一重項酸素を生成するためには、三重項励起分子を光励起で形成できる光増感剤が必要である。しかしながら、通常の有機化合物は基底状態が一重項状態であるため、三重項励起状態への光励起は禁制遷移となり、三重項励起分子は生じにくい（通常は一重項励起分子が生じる）。したがって、このような光増感剤としては、一重項励起状態から三重項励起状態への項間交差を起こしやすい化合物（あるいは、直接三重項励起状態へ光励起されるという禁制遷移を許

容する化合物)が求められている。言い換えれば、そのような化合物は光増感剤としての利用が可能であり、有益と言える。

#### 【0006】

また、そのような化合物は、しばしば燐光を放出することがある。燐光とは多重度の異なるエネルギー間の遷移によって生じる発光のことであり、通常の有機化合物では三重項励起状態から一重項基底状態へ戻る際に生じる発光のことをさす(これに対し、一重項励起状態から一重項基底状態へ戻る際の発光は、蛍光と呼ばれる)。燐光を放出できる化合物、すなわち三重項励起状態を発光に変換できる化合物(以下では、「燐光性化合物」と記す)の応用分野としては、発光性の化合物として有機化合物を用いた電界発光素子が挙げられる。

#### 【0007】

この電界発光素子は、薄型軽量・高速応答性・直流低電圧駆動などの特性から、次世代のフラットパネルディスプレイ素子として注目されているデバイスである。また、自発光型であり視野角が広いことから、視認性も比較的良好であり、携帯機器の表示画面に用いる素子として有効と考えられている。

#### 【0008】

有機化合物を発光体として用いる場合、電界発光素子の発光機構はキャリア注入型である。すなわち、電極間に電界発光層を挟んで電圧を印加することにより、陰極から注入された電子および陽極から注入されたホールが電界発光層中で再結合して励起分子を形成し、その励起分子が基底状態に戻る際にエネルギーを放出して発光する。

#### 【0009】

そして、励起分子の種類としては、先に述べた光励起の場合と同様、一重項励起状態( $S^*$ )と三重項励起状態( $T^*$ )が可能である。また、電界発光素子におけるその統計的な生成比率は、 $S^*:T^*=1:3$ であると考えられている(例えば、非特許文献2参照)。

#### 【0010】

#### 【非特許文献2】

筒井哲夫、応用物理学会 有機分子・バイオエレクトロニクス分科会 第3回



講習会テキスト、31-37 (1993)

【0011】

しかしながら、一般的な有機化合物は室温において、三重項励起状態からの発光（燐光）は観測されず、通常は一重項励起状態からの発光（蛍光）のみが観測される。有機化合物の基底状態は通常、一重項基底状態（ $S_0$ ）であるため、 $T^* \rightarrow S_0$ 遷移（燐光過程）は強度の禁制遷移となり、 $S^* \rightarrow S_0$ 遷移（蛍光過程）は許容遷移となるからである。

【0012】

したがって、電界発光素子における内部量子効率（注入したキャリアに対して発生するフォトン割合）の理論的限界は、 $S^*:T^*=1:3$ であることを根拠に25%とされていた。

【0013】

ところが、上述した燐光性化合物を用いれば、 $T^* \rightarrow S_0$ 遷移（燐光過程）が許容されるため、内部量子効率は75～100%にまで理論上は可能となる。つまり、従来の3～4倍の発光効率が可能となる。実際、燐光性化合物を用いた電界発光素子が相次いで発表され、その発光効率の高さが注目されている（例えば、非特許文献3、非特許文献4参照）。

【0014】

【非特許文献3】

D. F. オブライエン、外3名、アプライド フィジクス レターズ、vol. 74、No. 3、442-444 (1999)

【0015】

【非特許文献4】

テツオ ツツイ、外8名、ジャパニーズ ジャーナル オブ アプライド フィジクス、vol. 38、L1502-L1504 (1999)

【0016】

非特許文献3では白金を中心金属とするポルフィリン錯体を、非特許文献4ではイリジウムを中心金属とする有機金属錯体を用いており、いずれの錯体も燐光性化合物である。

## 【0017】

また、イリジウムを中心金属とする有機金属錯体（以下、「イリジウム錯体」と記す）を含む層と、公知の蛍光性化合物であるDCM2を含む層とを交互に積層することにより、イリジウム錯体で生成した三重項励起エネルギーをDCM2に移動させ、DCM2の発光に寄与させることもできる（例えば、非特許文献5参照）。この場合、DCM2の一重項励起状態の量（通常であれば25%以下）は、通常に比べて増幅されるため、DCM2の発光効率は増大する。これはいわば、蛍光性化合物であるイリジウム錯体の増感作用とも言える。

## 【0018】

## 【非特許文献5】

M. A. バルド、外2名、ネイチャー（ロンドン）、vol. 403、750-753（2000）

## 【0019】

非特許文献3～非特許文献5に示されるとおり、蛍光性化合物を用いた電界発光素子は、従来よりも高い発光効率を達成できる（つまり、少ない電流で高い輝度を達成できる）。したがって、蛍光性化合物を用いた電界発光素子は、高輝度発光・高発光効率を達成するための手法として、今後の開発において大きなウェートを占めるものと考えられる。

## 【0020】

以上のように、蛍光性化合物は項間交差を起こしやすく、なおかつ三重項励起状態からの発光（蛍光）を生じやすいため、光増感剤としての利用や、蛍光材料としての電界発光素子への適用が有用であり、期待されている化合物であるが、その数は少ないのが現状である。

## 【0021】

数少ない蛍光性化合物の中で、非特許文献4や非特許文献5で用いられているイリジウム錯体は、オルトメタル錯体と呼ばれる有機金属錯体の一種である。この錯体は蛍光寿命が数百ナノ秒であり、また、蛍光量子収率も高いことから、上述のポルフィリン錯体に比べると輝度の上昇に伴う効率の低下が小さいため、電界発光素子において有効である。その意味でも、このような有機金属錯体は、三

重項励起状態への直接光励起や項間交差を起こしやすい化合物、しいては燐光性化合物を合成するための一つの指針である。

#### 【0022】

非特許文献4や非特許文献5で用いられているイリジウム錯体の配位子の構造は比較的単純であり、色純度の良い緑色発光を示すが、発光色を他の色に変えるためには配位子の構造を変える必要がある。例えば、非特許文献6では、種々の配位子およびその配位子を用いたイリジウム錯体が合成されており、いくつかの発光色を実現している。

#### 【0023】

##### 【非特許文献6】

M. トンプソン、外10名、第10回 インターナショナル ワークショップ  
オン インオーガニック アンド オーガニック エレクトロルミネッセンス  
(EL '00)、35-38

#### 【0024】

しかしながら、これらの配位子はそのほとんどが中心金属と5員環を形成できるものに限られており、その中から適した発光色を探索しているのが現状である。つまり、適用できる配位子の種類がまだ少ないという問題がある。

#### 【0025】

また、それらの配位子の多くは合成が困難、あるいは合成に要するステップ数が多いため、材料自体のコスト上昇にもつながる。コストの観点で言えば、有機金属錯体自体の収率も重要である。

#### 【0026】

さらに、有機金属錯体は一般的に分解しやすく、分解しにくいものでも分解温度は決して高くはない。つまり、耐熱性に乏しいため、電界発光素子のような電子デバイスに応用する際には問題となる。

#### 【0027】

以上のことから、容易に合成できる配位子が適用でき、収率良く合成できる上に、耐熱性にも優れた有機金属錯体が求められている。そのような有機金属錯体を合成することにより、安価で耐熱性の高い光増感剤や燐光材料などが得られる

ためである。

【0028】

【発明が解決しようとする課題】

そこで本発明では、合成の容易な配位子を用いて収率良く得られる新規な有機金属錯体を提供することを課題とする。また特に、耐熱性に優れた新規な有機金属錯体を提供することを課題とする。

【0029】

また、前記有機金属錯体を用いて電界発光素子を作製することにより、発光効率の高い電界発光素子を提供することを課題とする。さらには前記電界発光素子を用いて発光装置を作製することにより、消費電力の低い発光装置を提供することを課題とする。

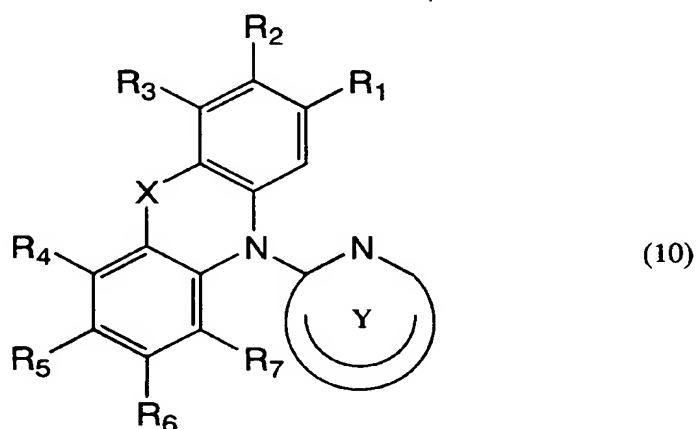
【0030】

【課題を解決するための手段】

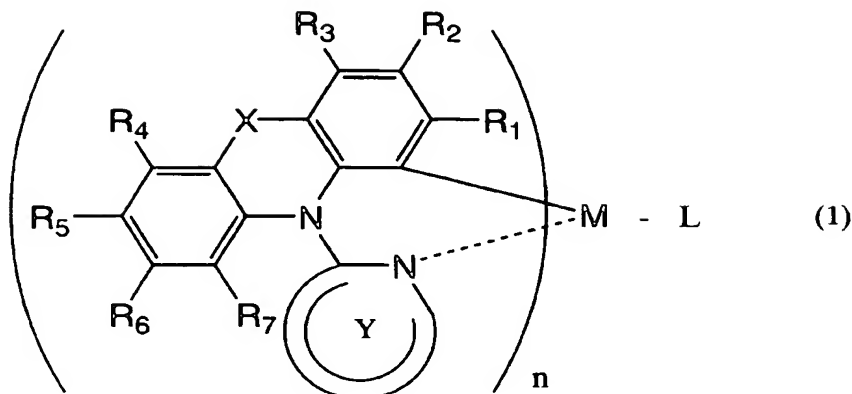
本発明者らは鋭意検討を重ねた結果、下記一般式(10)に示す配位子を中心金属原料とシクロメタル化反応させることにより、中心金属と6員環を形成する下記一般式(1)の有機金属錯体を合成できることを発見した。

【0031】

【化4】



## 【化5】



(R1～R7はそれぞれ同一でも異なっても良く、水素原子、またはハロゲン原子、または低級アルキル基、またはアルコキシ基、またはアシル基、またはニトロ基、またはシアノ基、またはアミノ基、またはジアルキルアミノ基、またはジアリールアミノ基、または置換基を有してもよいビニル基、または置換基を有してもよいアリール基、または置換基を有してもよい複素環残基、のいずれかを表す。また、R1とR2、R2とR3、R4とR5、R5とR6はそれぞれ互いに結合し、芳香族環を形成してもよい。またXは、酸素原子または硫黄原子を表す。またYは、窒素原子をヘテロ原子として含む複素環残基を表す。またMは、第9族原子または第10族原子を表し、前記Mが第9族原子の場合は $n=2$ 、第10族原子の場合は $n=1$ となる。またLは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれかを表す。)

## 【0032】

したがって本発明の構成は、上記一般式(1)で表される有機金属錯体を提供するものである。この有機金属錯体は、上記一般式(10)で表される配位子が極めて容易に合成できるため、安価に合成できる利点がある。また、収率も良好である。

## 【0033】

この時、上記一般式(1)中の複素環残基Yとしては、立体構造的な観点から

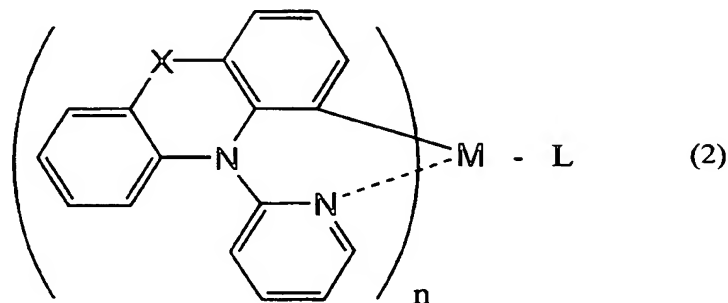
、2-ピリジル基、2-オキサゾリル基、2-チアゾリル基などの5員環または6員環からなる複素環残基であることが好ましい。特に、2-ピリジル基は合成が容易であり好ましい。

【0034】

また、本発明のより好ましい構成は、下記一般式(2)で表される有機金属錯体を提供するものである。

【0035】

【化6】



(Xは、酸素原子または硫黄原子を表す。またMは、第9族原子または第10族原子を表し、前記Mが第9族原子の場合は $n=2$ 、第10族原子の場合は $n=1$ となる。またLは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれかを表す。)

【0036】

さらに本発明者らは、本発明の有機金属錯体が燐光発光できることを見出した。ここで、より効率よく燐光発光を得るためには、重原子効果の観点から中心金属としては重い金属の方が好ましい。したがって本発明では、中心金属がイリジウム原子または白金原子であることを特徴とする。

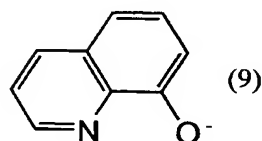
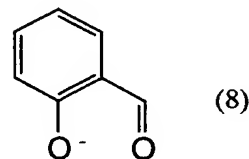
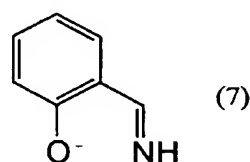
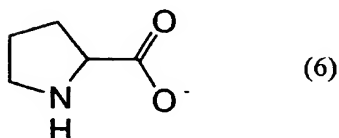
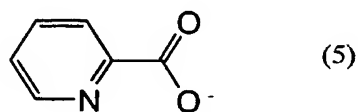
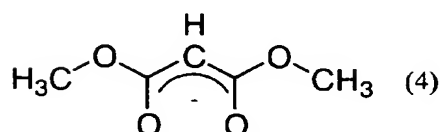
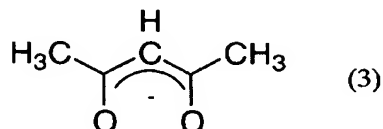
【0037】

また、上記一般式(1)または上記一般式(2)において、配位子Lは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸

基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれかであれば何でもよいが、以下の構造式(3)～(9)に示すモノアニオン性の二座キレート配位子のいずれかが好ましい。これらのモノアニオン性の二座キレート配位子は、配位能力が高く、また、安価に入手することができるため、有効である。

【0038】

【化7】



【0039】

ところで、本発明の有機金属錯体は、三重項励起状態を発光に変換することが可能であるため、電界発光素子に適用することにより素子の高効率化が可能となり、非常に有効である。したがって本発明では、本発明の有機金属錯体を用いた電界発光素子も含むものとする。

【0040】

この時、本発明の有機金属錯体は、非特許文献5で述べられたような増感作用を引き起こすための物質として、あるいはホール輸送層等のキャリア輸送層にお

ける物質として用いてもよいが、発光体としての利用法が発光効率の面で効果的である。したがって本発明では、本発明の有機金属錯体を発光体として用いた電界発光素子を特徴とする。

#### 【0041】

なお、このようにして得られた本発明の電界発光素子は高い発光効率を実現できるため、これを発光素子として用いた発光装置は、低消費電力を実現できる。したがって本発明では、本発明の電界発光素子を用いた発光装置も含むものとする。

#### 【0042】

なお、本明細書中における発光装置とは、発光素子として電界発光素子を用いた画像表示デバイスもしくは発光デバイスを指す。また、電界発光素子にコネクタ、例えば異方導電性フィルム (FPC: Flexible Printed Circuit) もしくはTAB (Tape Automated Bonding) テープもしくはTCP (Tape Carrier Package) が取り付けられたモジュール、TABテープやTCPの先にプリント配線板が設けられたモジュール、または電界発光素子にCOG (Chip On Glass) 方式によりIC (集積回路) が直接実装されたモジュールも全て発光装置に含むものとする。

#### 【0043】

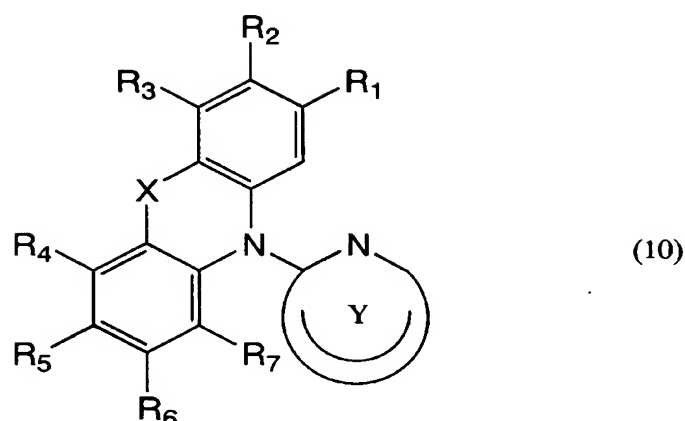
##### 【発明の実施の形態】

下記一般式 (10) で表される配位子は、例えば、フェノチアジン誘導体Aと複素環化合物のヨード化物Bとを反応させる下記合成スキーム (a) により合成することができる。ただし、合成手法はこれに限定されることはない。

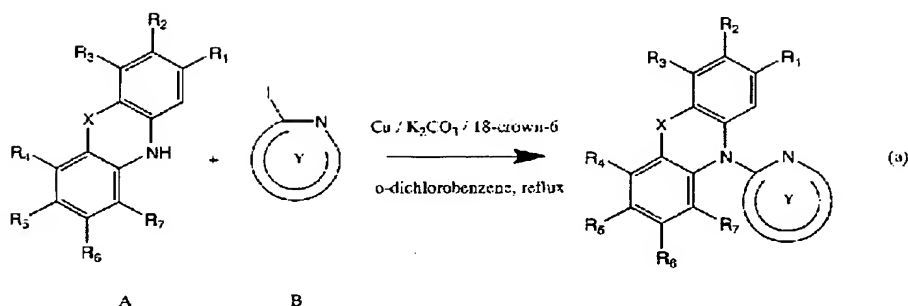
#### 【0044】



## 【化 8】



## 【化 9】



## 【0045】

なお、上記一般式(10)においては、R1～R7はそれぞれ同一でも異なっても良く、水素原子、またはハロゲン原子、または低級アルキル基、またはアルコキシ基、またはアシル基、またはニトロ基、またはシアノ基、またはアミノ基、またはジアルキルアミノ基、またはジアリールアミノ基、または置換基を有してもよいビニル基、または置換基を有してもよいアリール基、または置換基を有してもよい複素環残基、のいずれかを表す。また、R1とR2、R2とR3、R4とR5、R5とR6はそれぞれ互いに結合し、芳香族環を形成してもよい。

## 【0046】

この時、低級アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、ヘキシ

ル基などがあり、炭素数が1～6のものが好ましい。また、トリフルオロメチル基のようなハロゲン化アルキル基や、シクロヘキシル基のようなシクロアルキル基であってもよい。アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、イソプロポキシ基、*n*-ブトキシ基、*sec*-ブトキシ基、*tert*-ブトキシ基、ヘキソキシ基などがあり、炭素数が1～6のものが好ましい。アシル基としては、アセチル基などが可能である。ジアルキルアミノ基としては、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基などがあり、アルキル鎖の炭素数が1～4のものが好ましい。ジアリールアミノ基としては、ジフェニルアミノ基、ビス( $\alpha$ -ナフチル)アミノ基などがあり、ビス(*m*-トリル)アミノ基のような置換アリールアミノ基であってもよい。ビニル基としては、ジフェニルビニル基のような置換基を有するビニル基であってもよい。アリール基としては、フェニル基、ナフチル基などの無置換アリール基の他、*o*-トリル基、*m*-トリル基、*p*-トリル基、キシリル基、メトキシフェニル基、エトキシフェニル基、フルオロフェニル基などの置換アリール基であってもよい。複素環残基としては、ピリジル基、フリル基、チエニル基などがある。

#### 【0047】

また、上記一般式(10)においては、Xは酸素原子または硫黄原子を表す。また、複素環残基Yとしては、2-ベンゾオキサゾリル基のような多環式基でもよいが、金属への配位を妨げずに配位しやすい立体構造を考慮すると、5員環または6員環の複素環残基が好ましい。具体的には、2-ピリジル基、4-ピリミジル基、2-オキサゾリル基、2-チアゾリル基などである。

#### 【0048】

上記一般式(10)で表される配位子のより具体的な例としては、10-(2-ピリジル)フェノチアジン、10-(2-ピリジル)-3,7-ジメチルフェノチアジン、10-(2-ピリジル)-4,6-ジメチルフェノチアジン、10-(2-ピリジル)-3,7-ジメトキシフェノチアジン、10-(2-ピリジル)-3,7-ビス(ジメチルアミノ)フェノチアジン、10-(2-ピリジル)-3,7-ビス(ジフェニルアミノ)フェノチアジン、10-(2-ピリジル)-3,7-ビス(ジフェニルビニル)フェノチアジン、10-(2-ピリジル)

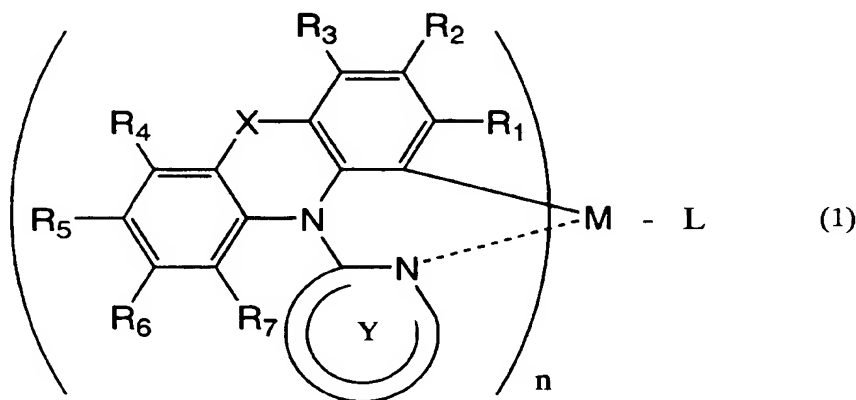
)-ジベンゾ [c] [h] -フェノチアジン、10-(2-オキサゾリル) フェノチアジン、10-(2-チアゾリル) フェノチアジン、10-(2-ピリジル) フェノキサジン、10-(2-ピリジル) -3, 7-ジメチルフェノキサジン、10-(2-ピリジル) -4, 6-ジメチルフェノキサジン、10-(2-ピリジル) -3, 7-ジメトキシフェノキサジン、10-(2-ピリジル) -3, 7-ビス (ジメチルアミノ) フェノキサジン、10-(2-ピリジル) -3, 7-ビス (ジフェニルアミノ) フェノキサジン、10-(2-ピリジル) -3, 7-ビス (ジフェニルビニル) フェノキサジン、10-(2-ピリジル) -ジベンゾ [c] [h] -フェノキサジン、10-(2-オキサゾリル) フェノキサジン、10-(2-チアゾリル) フェノキサジン、などがあるが、本発明ではこれらに限定されることはない。

## 【0049】

次に、上述のような配位子を用いて、下記一般式 (1) で表される本発明の有機金属錯体を形成する。

## 【0050】

## 【化10】



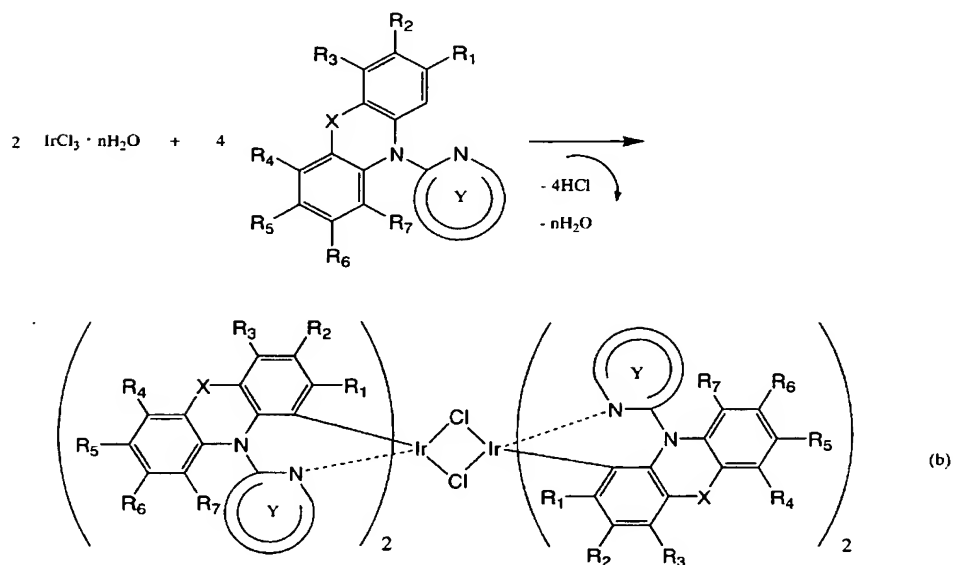
## 【0051】

この時のシクロメタル化反応としては、公知の合成法を用いればよい。例えば、イリジウムを中心金属とする本発明の有機金属錯体を合成する際は、中心金属原料として塩化イリジウムの水和物を用い、上記一般式 (10) の配位子と混合して窒素雰囲気下にて加熱環流することにより、まず塩素架橋の複核錯体を合成

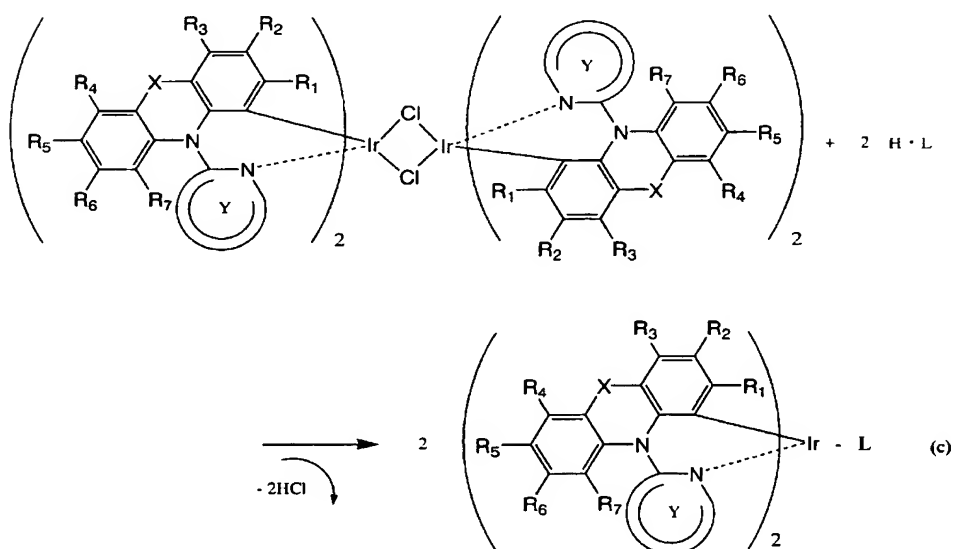
する（下記合成スキーム（b））。次に、得られた前記複核錯体と二座キレート配位子Lとを混合して窒素雰囲気下にて環流することにより、塩素架橋を二座キレート配位子Lで切断し、本発明の有機金属錯体を得る（下記合成スキーム（c））。

【0052】

【化11】



【化12】



【0053】

なお、上記一般式（1）におけるR1～R7、X、Yは、先に述べた配位子の

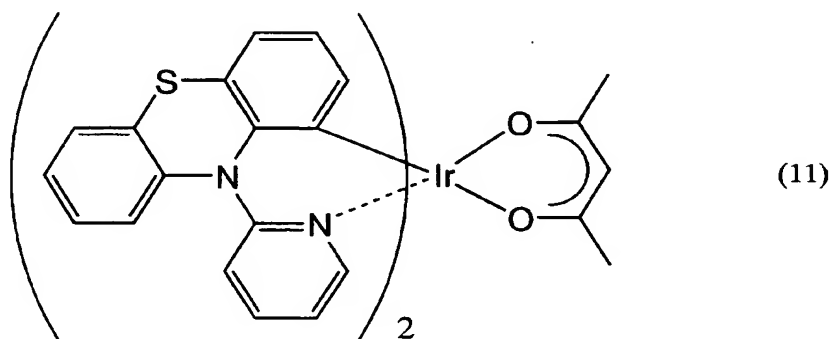
一般式(10)におけるR1～R7、X、Yと同一のものである。またMは、第9族原子または第10族原子を表し、具体的には、白金原子やイリジウム原子などである。なお、前記Mが第9族原子の場合は $n=2$ 、第10族原子の場合は $n=1$ となる。またLは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれかを表し、具体的には、アセチルアセトン、マロン酸ジメチル、ピコリン酸、プロリン、サリチリデンアミン、サリチルアルデヒド、8-キノリノールなどである。

#### 【0054】

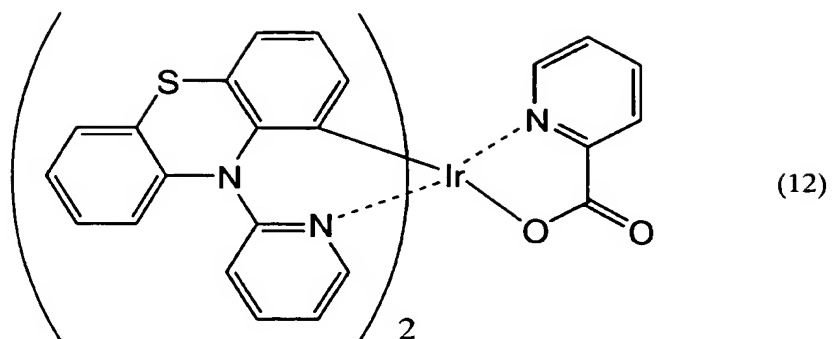
このようにして得られる本発明の有機金属錯体の具体例としては、例えば下記構造式(11)～(18)などがある。ただし、本発明の有機金属錯体はこれらに限定されるものではない。

#### 【0055】

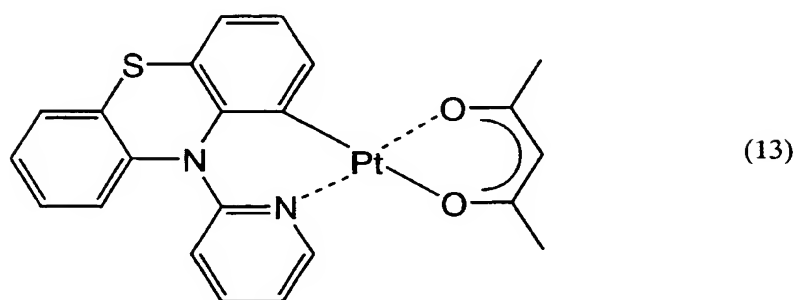
#### 【化13】



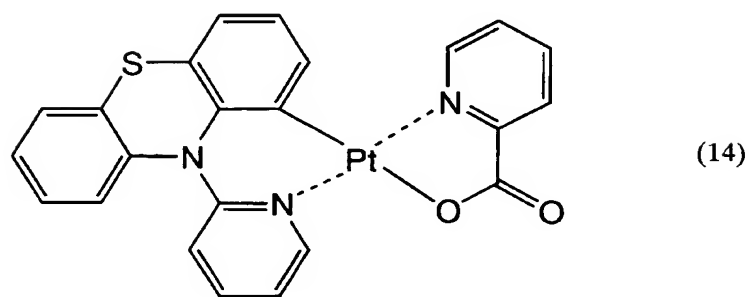
【化 14】



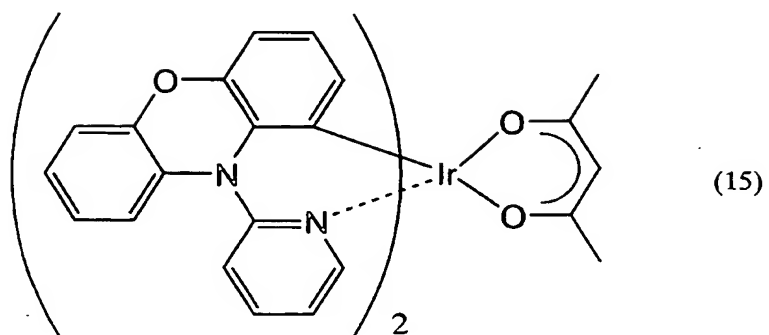
【化 15】



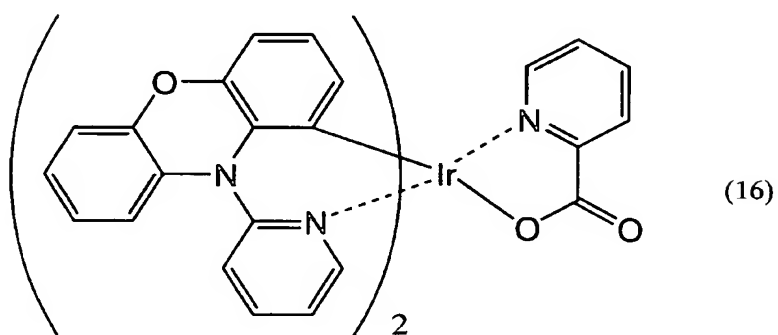
【化 16】



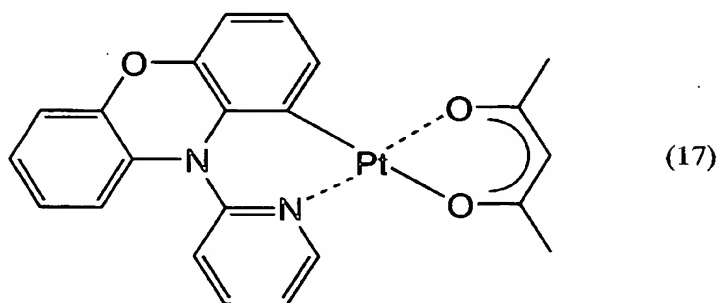
【化17】



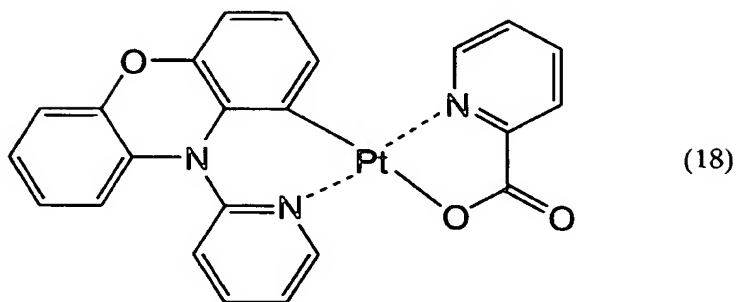
【化18】



【化19】



【化20】



【0056】

本発明の有機金属錯体は、光増感剤や燐光材料として用いることができるが、以下では、電界発光素子に適用する形態について述べる。

#### 【0057】

本発明における電界発光素子は、基本的には、一对の電極（陽極及び陰極）間に上述した本発明の有機金属錯体を含む電界発光層（少なくとも発光層を含み、かつ、ホール注入層、ホール輸送層、発光層、ホールブロッキング層、電子輸送層、電子注入層から選ばれる一つまたは複数の層からなる）を挟持した素子構成である。

#### 【0058】

また、電界発光層に用いる本発明の有機金属錯体以外の材料としては、公知の材料を用いることができ、低分子系材料および高分子系材料のいずれを用いることもできる。なお、電界発光層を形成する材料には、有機化合物材料のみから成るものだけでなく、無機化合物を一部に含む構成も含めるものとする。

#### 【0059】

以下では、本発明の電界発光素子の実施形態について、詳細に説明する。

#### 【0060】

##### [実施の形態1]

本実施の形態1では、本発明の有機金属錯体を含む発光層と、低分子系材料からなるホール注入層、ホール輸送層、ホールブロッキング層および電子輸送層を有する電界発光素子の素子構成について図1を用いて説明する。

#### 【0061】

図1では、基板100上に第1の電極101が形成され、第1の電極101上に電界発光層102が形成され、その上に第2の電極103が形成された構造を有する。

#### 【0062】

なお、ここで基板100に用いる材料としては、従来の電界発光素子に用いられているものであれば良く、例えば、ガラス、石英、透明プラスチックなどからなるものを用いることができる。

#### 【0063】



また、本実施の形態 1 における第 1 の電極 101 は陽極として機能し、第 2 の電極 103 は陰極として機能する。

#### 【0064】

すなわち第 1 の電極 101 は陽極材料で形成され、ここで用いることのできる陽極材料としては、仕事関数の大きい（仕事関数 4.0 eV 以上）金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。なお、陽極材料の具体例としては、ITO（Indium Tin Oxide）、酸化インジウムに 2～20% の酸化亜鉛（ZnO）を混合した IZO（Indium Zinc Oxide）の他、金（Au）、白金（Pt）、ニッケル（Ni）、タングステン（W）、クロム（Cr）、モリブデン（Mo）、鉄（Fe）、コバルト（Co）、銅（Cu）、パラジウム（Pd）、または金属材料の窒化物（TiN）等を用いることができる。

#### 【0065】

一方、第 2 の電極 103 の形成に用いられる陰極材料としては、仕事関数の小さい（仕事関数 3.8 eV 以下）金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。なお、陰極材料の具体例としては、元素周期表の 1 族または 2 族に属する元素、すなわち Li や Cs 等のアルカリ金属、および Mg、Ca、Sr 等のアルカリ土類金属、およびこれらを含む合金（Mg：Ag、Al：Li）や化合物（LiF、CsF、CaF<sub>2</sub>）の他、希土類金属を含む遷移金属を用いて形成することができるが、Al、Ag、ITO 等の金属（合金を含む）との積層により形成することもできる。

#### 【0066】

なお、上述した陽極材料及び陰極材料は、蒸着法、スパッタリング法等により薄膜を形成することにより、それぞれ第 1 の電極 101 及び第 2 の電極 103 を形成する。膜厚は、10～500 nm とするのが好ましい。

#### 【0067】

また、本発明の電界発光素子において、電界発光層におけるキャリアの再結合により生じる光は、第 1 の電極 101 または第 2 の電極 103 の一方、または両方から外部に出射される構成となる。すなわち、第 1 の電極 101 から光を出射

させる場合には、第1の電極101を透光性の材料で形成することとし、第2の電極103側から光を出射させる場合には、第2の電極103を透光性の材料で形成することとする。

#### 【0068】

また、電界発光層102は複数の層を積層することにより形成されるが、本実施の形態1では、ホール注入層111、ホール輸送層112、発光層113、ホールブロッキング層114、および電子輸送層115を積層することにより形成される。

#### 【0069】

ホール注入層111を形成するホール注入材料としては、フタロシアニン系の化合物が有効である。例えば、フタロシアニン（略称：H<sub>2</sub>Pc）、銅フタロシアニン（略称：CuPc）等を用いることができる。

#### 【0070】

ホール輸送層112を形成するホール輸送材料としては、芳香族アミン系（すなわち、ベンゼン環-窒素の結合を有するもの）の化合物が好適である。広く用いられている材料として、例えば、4,4'-ビス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニル-アミノ]-ビフェニル（略称：TPD）の他、その誘導体である4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニル-アミノ]-ビフェニル（略称： $\alpha$ -NPD）、あるいは4,4',4''-トリス(N,N-ジフェニル-アミノ)-トリフェニルアミン（略称：TDATA）、4,4',4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニル-アミノ]-トリフェニルアミン（略称：MTDATA）などのスターバースト型芳香族アミン化合物が挙げられる。

#### 【0071】

発光層113は、本発明の有機金属錯体を含み、例えばホスト材料と共蒸着することにより形成される。ホスト材料としては公知の材料を用いることができ、4,4'-ビス(N-カルbazolil)-ビフェニル（略称：CBP）や、2,2',2''-(1,3,5-ベンゼントリール)-トリス[1-フェニル-1H-ベンズイミダゾール]（略称：TPBI）などが挙げられる。あるいはまた、

発光層 113 は、本発明の有機金属錯体のみからなる層で形成してもよい。

#### 【0072】

ホールブロッキング層 114 を形成するホールブロッキング材料としては、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)-4-フェニルフェノラト-アルミニウム(略称: BA1q)、1,3-ビス[5-(p-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール-2-イル]ベンゼン(略称: OXD-7)、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4-ビフェニリル)-1,2,4-トリアゾール(略称: TAZ)、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-(4-エチルフェニル)-5-(4-ビフェニリル)-1,2,4-トリアゾール(略称: p-EtTAZ)、バソフェナントロリン(略称: BPhen)、バソキュプロイン(略称: BCP)等を用いることができる。

#### 【0073】

電子輸送層 115 を形成する場合の電子輸送材料としては、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(略称: Alq3)、トリス(5-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(略称: Almq3)、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]-キノリナト)ベリリウム(略称: BeBq2)、先に述べたBA1qなど、キノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体が好適である。また、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)-ベンゾオキサゾラト]亜鉛(略称: Zn(BOX)2)、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)-ベンゾチアゾラト]亜鉛(略称: Zn(BTZ)2)などのオキサゾール系、チアゾール系配位子を有する金属錯体もある。さらに、金属錯体以外にも、2-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(略称: PBD)や、先に述べたOXD-7、TAZ、p-EtTAZ、BPhen、BCPなども電子輸送材料として用いることができる。

#### 【0074】

以上により、本発明の有機金属錯体を含む発光層 113 と、低分子系材料からなるホール注入層 111、ホール輸送層 112、ホールブロッキング層 114 および電子輸送層 115 を有する電界発光素子を形成することができる。

#### 【0075】

なお、本実施の形態 1 においては、本発明の有機金属錯体から得られる発光を発光色とする電界発光素子である。

#### 【0076】

##### [実施の形態 2]

本実施の形態 2 では、本発明の有機金属錯体を含む発光層と、高分子系材料からなるホール注入層を有し、これらを湿式プロセスにて形成する電界発光素子の素子構成について図 2 を用いて説明する。

#### 【0077】

なお、基板 200、第 1 の電極 201、第 2 の電極 203 については、実施の形態 1 と同様の材料を用いて、同様にして形成することができるため説明を省略する。

#### 【0078】

また、電界発光層 202 は、本実施の形態 2 ではホール注入層 211、発光層 212 を積層することにより形成される。

#### 【0079】

ホール注入層 211 を形成するホール注入材料としては、ポリスチレンスルホン酸（略称：PSS）をドーブしたポリエチレンジオキシチオフェン（略称：PEDOT）や、テトラシアノキノジメタン（略称：TCNQ）などのアクセプタをドーブしたポリアニリン（略称：PAni）やポリビニルカルバゾール（略称：PVK）などを用いることができる。

#### 【0080】

発光層 212 は、本発明の有機金属錯体をゲスト材料として含む。ホスト材料はバイポーラ性の材料であれば良いが、ホール輸送材料と電子輸送材料とを混合してバイポーラ性としても良い。例えば、ホール輸送性の高分子化合物（例えば PVK）と上述した電子輸送材料（例えば PBD）とを 7：3 のモル比で同一溶媒に溶かし、さらには本発明の有機金属錯体を適量（5 wt % 程度）添加した溶液を調製し、この溶液を湿式塗布することによって発光層 212 を得ることができる。

#### 【0081】

以上により、本発明の有機金属錯体を含む発光層 212 と、高分子系材料からなるホール注入層 211 を有し、これらを湿式プロセスにて形成する電界発光素子を得ることができる。

#### 【0082】

なお、本実施の形態 2 においては、本発明の有機金属錯体から得られる発光を発光色とする電界発光素子である。

#### 【0083】

##### 〔実施の形態 3〕

本実施の形態 3 では、本発明の有機金属錯体と蛍光性化合物の二種類のゲスト材料を含む発光層と、低分子系材料からなるホール注入層、ホール輸送層、ホールブロッキング層および電子輸送層を有する電界発光素子の素子構成について図 3 を用いて説明する。

#### 【0084】

なお、基板 300、第 1 の電極 301、第 2 の電極 303、ホール注入層 311、ホール輸送層 312、ホールブロッキング層 314、電子輸送層 315 については、実施の形態 1 と同様の材料を用いて、同様にして形成することができるため説明を省略する。

#### 【0085】

本実施の形態の発光層 313 は、ホスト材料と、第一のゲスト材料である本発明の有機金属錯体と、第二のゲスト材料である蛍光性化合物と、からなる。ホスト材料としては、実施の形態 1 で述べた材料を用いればよい。

#### 【0086】

また、第二のゲスト材料としては公知の蛍光性化合物を用いることができ、具体的には、DCM1、DCM2、DCJT B、キナクリドン、N、N-ジメチルキナクリドン、ルブレン、ペリレン、DPT、C<sub>60</sub>-6、PMDFB、BTX、ABTX 等を用いることができる。

#### 【0087】

本実施の形態 3 においては、非特許文献 6 と同様、発光層 313 において第一のゲスト材料である本発明の有機金属錯体は増感作用を起こす物質として働き、

第二のゲスト材料である蛍光性化合物の一重項励起状態の量を増幅する。したがって、本実施の形態3の電界発光素子は、蛍光性化合物から得られる発光を発光色とする発光素子であり、なおかつ、その発光効率を従来の蛍光性化合物を用いた電界発光素子に比べて向上させることができる。

### 【0088】

#### 【実施例】

#### 【合成例1】

本合成例では、上記構造式(11)で表される本発明の有機金属錯体(略称:  $\text{Ir}(\text{ppt})_2(\text{acac})$ )の合成法を例示する。

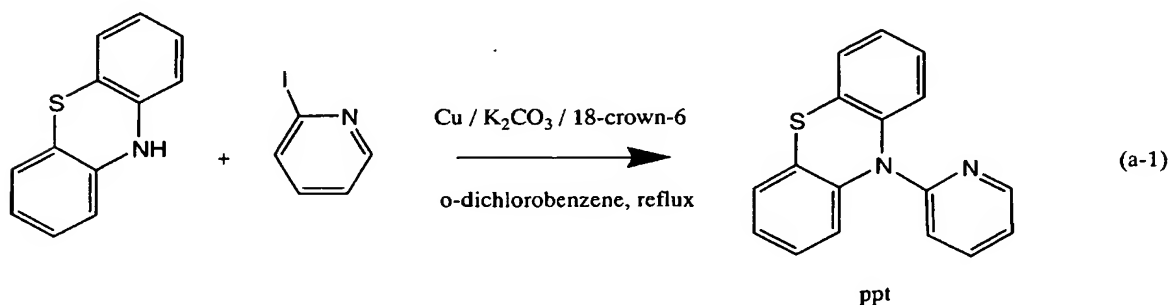
### 【0089】

#### 【ステップ1: 配位子(ppt)の合成】

まず、o-ジクロロベンゼン・20mlを溶媒として、フェノチアジン(東京化成工業社製)を2.35g(11.8mmol)、2-ヨードピリジン(東京化成工業社製)を3.63g(17.7mmol)、炭酸カリウムを6.55g、銅粉末を1.5g、18-クラウン-6-エーテルを0.31g混合し、窒素雰囲気中で16時間環流した。その後、銅および無機塩を除去し、トルエン溶媒にてカラム精製を行うことにより、配位子ppt(10-(2-ピリジル)フェノチアジン)を得た(乳白色粉末、収率70%)。合成スキームの概要を下記(a-1)に示す。

### 【0090】

#### 【化21】



### 【0091】

なお、得られた乳白色粉末のIR吸収スペクトルを測定したところ、フェノチ

アジンに由来する N-H 伸縮振動 ( $3340\text{ cm}^{-1}$ ) が消失しており、反応が進行していることを示唆している。

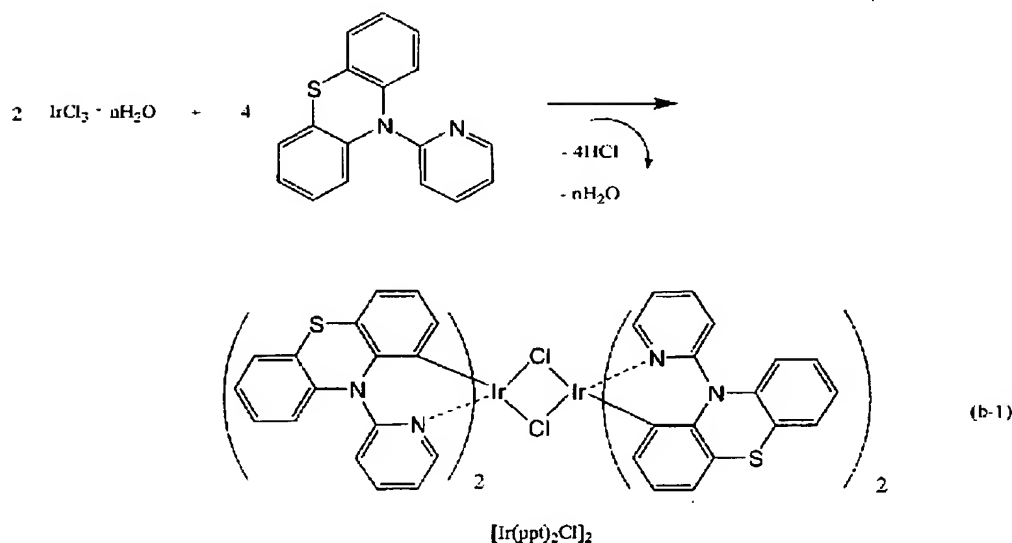
### 【0092】

[ステップ2: 複核錯体 ( $[\text{Ir}(\text{ppt})_2\text{Cl}]_2$ ) の合成]

次に、2-エトキシエタノール 30 ml と水 10 ml との混合液を溶媒として、上記で得た ppt を 1.19 g (4.3 mmol)、塩化イリジウム ( $\text{IrCl}_3 \cdot \text{HCl} \cdot \text{H}_2\text{O}$ ) (キシダ化学社製) を 0.50 g (1.7 mmol) 混合し、窒素雰囲気下にて 18 時間環流することにより、複核錯体  $[\text{Ir}(\text{ppt})_2\text{Cl}]_2$  を得た (黄色粉末、収率 70%)。合成スキームの概要を下記 (b-1) に示す。

### 【0093】

#### 【化22】



### 【0094】

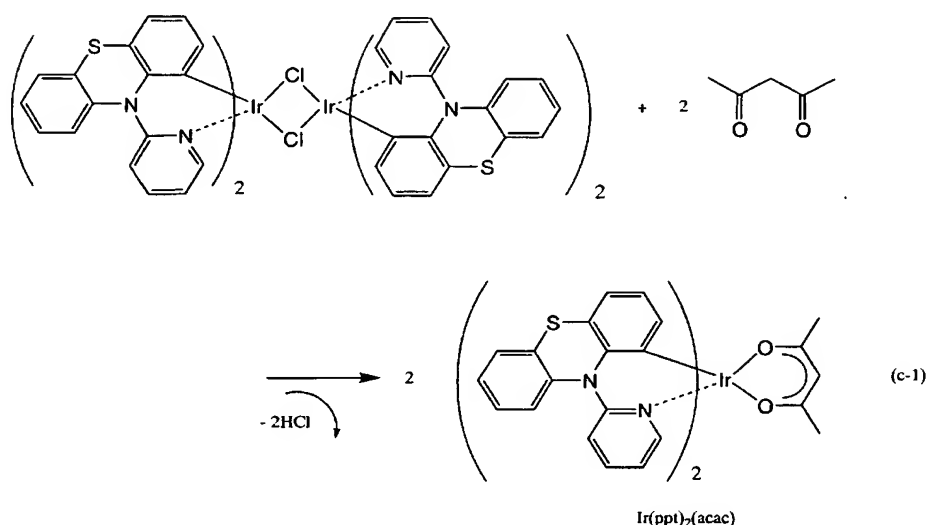
[ステップ3: 本発明の有機金属錯体 ( $\text{Ir}(\text{ppt})_2(\text{acac})$ ) の合成]

さらに、2-エトキシエタノール 30 ml を溶媒として、上記で得られた  $[\text{Ir}(\text{ppt})_2\text{Cl}]_2$  を 0.78 g (0.50 mmol)、アセチルアセトンを 0.15 ml (1.5 mmol)、炭酸ナトリウムを 0.53 g 混合し、窒素雰囲気下にて 18 時間環流した。得られた黄色粉末を、ジクロロメタンを溶媒とし

てカラム精製することにより、本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{ppt})_2(\text{acac})$  を得た（黄色粉末、収率 60%）。合成スキームの概要を下記（c-1）に示す。

【0095】

【化 23】



【0096】

なお、得られた黄色粉末の質量分析（ESI-MS）を行ったところ、 $\text{Ir}(\text{ppt})_2(\text{acac})$ （組成式： $\text{C}_{39}\text{H}_{29}\text{IrN}_4\text{O}_2\text{S}_2$ 、分子量：842）の分子量前後である  $m/z$  840, 841, 842, 843, 844 に同位体イオンが観測された。また、 $\text{Ir}(\text{ppt})_2(\text{acac})$  の Na 付加体として、 $m/z$  863, 864, 865, 866, 867 に同様の同位体イオンが観測された。これら同位体ピークのイオン強度のパターンは、理論計算の結果と同様であった。したがって、上記構造式（11）で示した本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{ppt})_2(\text{acac})$  が得られていると考えられる。

【0097】

また、得られた本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{ppt})_2(\text{acac})$  の分解温度  $T_d$  を TG-DTA により測定したところ、 $T_d = 337^\circ\text{C}$  であり、良好な耐熱性を示すことがわかった。また、収率も上記の通り良好であり、コスト的にも優れている。



## 【0098】

次に、 $\text{Ir}(\text{ppt})_2(\text{acac})$  のジクロロエタン中における吸収スペクトルを図6に示す。なお、図6では、配位子  $\text{ppt}$  の吸収スペクトルも合わせて記載した。配位子  $\text{ppt}$  は  $280\text{nm}$  および  $300\text{nm}$  付近に吸収ピークを有している。一方、本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{ppt})_2(\text{acac})$  は、①  $300\text{nm}$ 、②  $350\text{nm}$ 、③  $380\text{nm}$ 、④  $425\text{nm}$  付近の4箇所吸収ピークを有している。

## 【0099】

吸収ピーク①は、配位子  $\text{ppt}$  の吸収とほぼ一致しており、配位子に起因する一重項  $\pi-\pi^*$  遷移である。また、②、③、④の吸収ピークは、オルトメタル錯体等によく見られる有機金属錯体特有の吸収であり、一重項  $\text{MLCT}$  遷移、三重項  $\pi-\pi^*$  遷移、三重項  $\text{MLCT}$  遷移などに対応すると類推される。特に、④の吸収ピークは可視領域においてブロードな裾を引いており、三重項  $\text{MLCT}$  遷移特有の吸収スペクトルであると考えられる。すなわち、 $\text{Ir}(\text{ppt})_2(\text{acac})$  は三重項励起状態への直接光励起や項間交差が可能な化合物であることがわかった。

## 【0100】

また、 $\text{Ir}(\text{ppt})_2(\text{acac})$  粉末の発光スペクトル（フォトルミネッセンス）を図7に示す。励起光は  $365\text{nm}$  とした。図7に示す通り、常温で、 $520\text{nm}$  に発光ピークを有する緑色発光を示した。図6の吸収スペクトルを考慮すると、燐光発光であると考えられる。

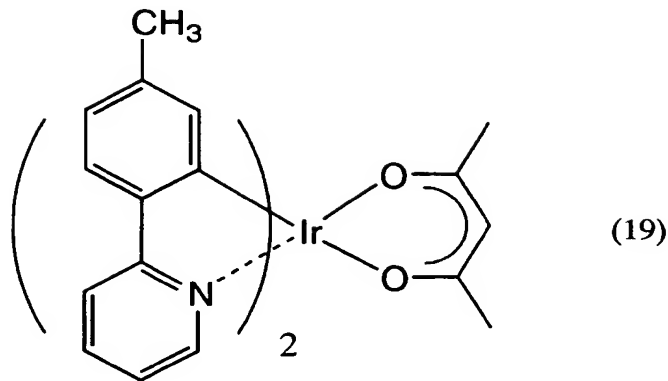
## 【0101】

## [比較例1]

下記構造式(19)で表される従来のイリジウム錯体（略称： $\text{Ir}(\text{tpy})_2(\text{acac})$ ）を合成し、分解温度  $T_d$  を  $\text{TG-DTA}$  により測定したところ、 $T_d=298^\circ\text{C}$  であった。

## 【0102】

## 【化 24】



## 【0103】

一方、合成例1で述べた本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{ppt})_2(\text{acac})$  の  $T_d$  は  $337^\circ\text{C}$  であるため、従来のイリジウム錯体  $\text{Ir}(\text{tpy})_2(\text{acac})$  の方が  $40^\circ\text{C}$  近く  $T_d$  が低い結果となった。したがって、本発明の有機金属錯体は耐熱性にも優れていることがわかった。

## 【0104】

## [合成例2]

本合成例では、上記構造式(15)で表される本発明の有機金属錯体(略称： $\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{acac})$ )の合成法を例示する。

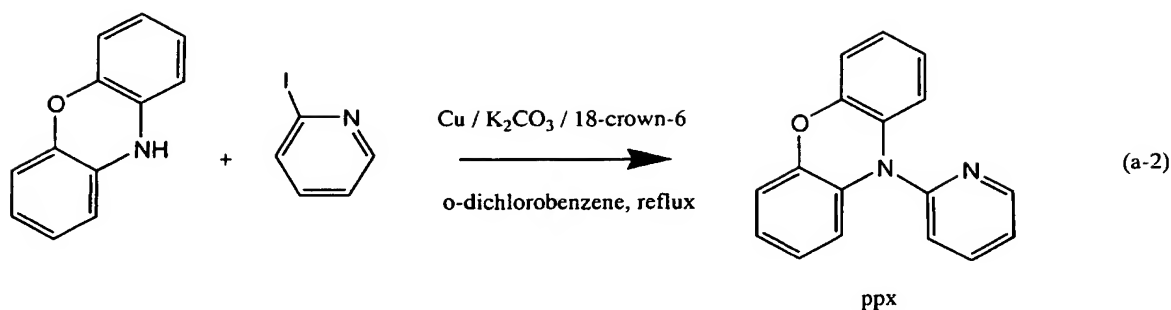
## 【0105】

## [ステップ1：配位子(ppx)の合成]

まず、オルトジクロロベンゼン・20mlを溶媒として、フェノキサジン を 1.73g、2-ヨードピリジン を 2.90g、炭酸カリウム を 5.24g、銅粉末 を 1.2g、18-クラウン-6-エーテル を 0.25g 混合し、窒素雰囲気下にて8時間還流した。その後、銅および無機塩を除去し、ジクロロメタン溶媒にてカラム精製を行うことにより、配位子 ppx (1-(2-ピリジル)フェノキサジン)を得た(白色粉末、収率91%)。合成スキームの概要を下記(a-2)に示す。

## 【0106】

## 【化 2 5】



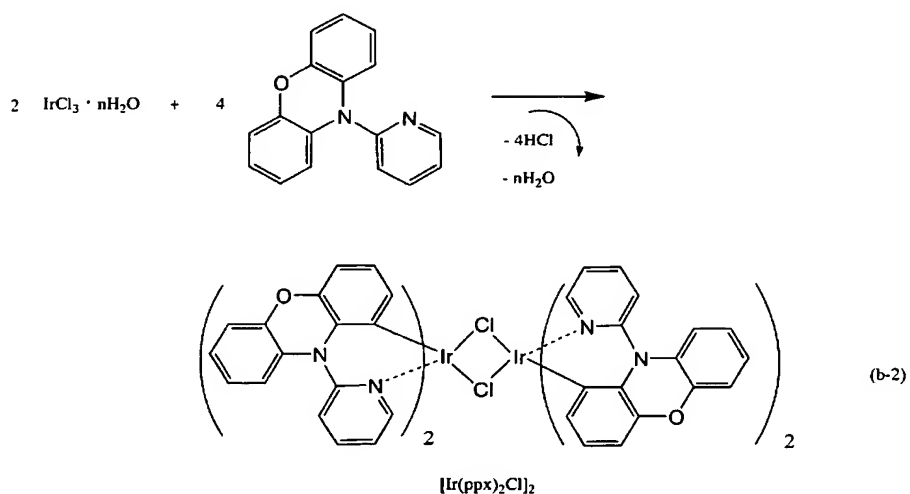
## 【0107】

[ステップ2: 複核錯体 ( $[\text{Ir}(\text{ppx})_2\text{Cl}]_2$ ) の合成]

次に、2-エトキシエタノール 30 ml と水 10 ml との混合液を溶媒として、上記で得た ppx を 2.18 g、塩化イリジウム ( $\text{IrCl}_3 \cdot \text{HCl} \cdot \text{H}_2\text{O}$ ) を 1.00 g 混合し、窒素雰囲気下で 14 時間還流することにより、複核錯体  $[\text{Ir}(\text{ppx})_2\text{Cl}]_2$  を得た (黄色粉末、収率 96%)。合成スキームの概要を下記 (b-2) に示す。

## 【0108】

## 【化 2 6】



## 【0109】

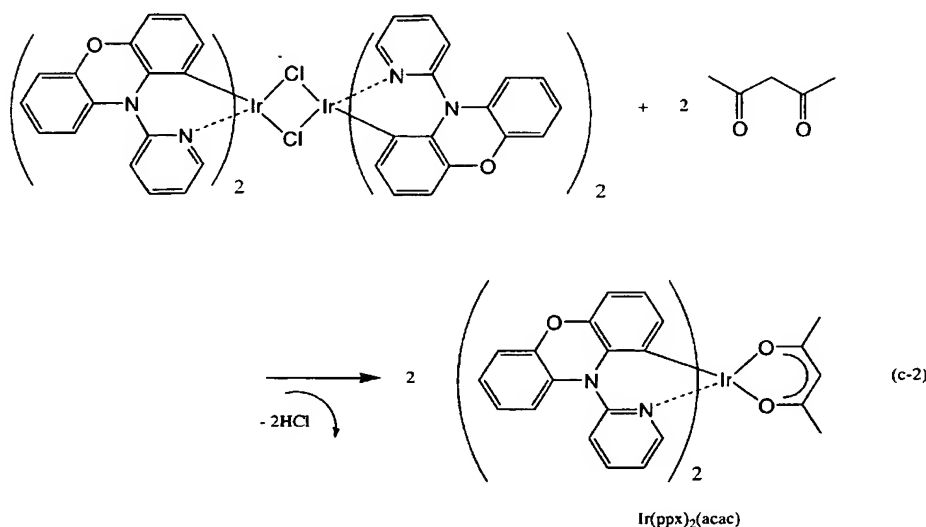
[ステップ3: 本発明の有機金属錯体 ( $[\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{acc})]$ ) の合成]

さらに、2-エトキシエタノール 30 ml を溶媒として、上記で得られた  $[\text{Ir}(\text{ppx})_2\text{Cl}]_2$  を用いて、

$\text{Ir}(\text{ppx})_2\text{Cl}]_2$  を 1.00 g、アセチルアセトン ( $\text{Hacac}$ ) を 0.21 ml、炭酸ナトリウムを 0.71 g 混合し、窒素雰囲気下にて 14 時間還流した。得られた固体を、水、エタノール、エーテル溶媒にて洗浄することにより、本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{acac})$  を得た (黄色粉末、収率 87%)。合成スキームの概要を下記 (c-2) に示す。

【0110】

【化 27】



【0111】

また、得られた本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{acac})$  の分解温度  $T_d$  を TGA-DTA により測定したところ、 $T_d = 345^\circ\text{C}$  であり、比較例 1 の  $\text{Ir}(\text{tpy})_2(\text{acac})$  ( $T_d = 298^\circ\text{C}$ ) に比べ、良好な耐熱性を示すことがわかった。また、収率も上記の通り良好であり、コスト的にも優れている。

【0112】

次に、 $\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{acac})$  のジクロロメタン中における吸収スペクトルおよび発光スペクトル (フォトルミネッセンス) を図 8 に示す。本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{acac})$  は 256 nm、314 nm、348 nm および 410 nm に吸収ピークを有しており、合成例 1 と同様、オルトメタル錯体等によく見られる有機金属錯体特有の吸収スペクトルを呈していた。また、

発光スペクトルは 524 nm にピークを有しており、緑色発光であった。

### 【0113】

#### [合成例 3]

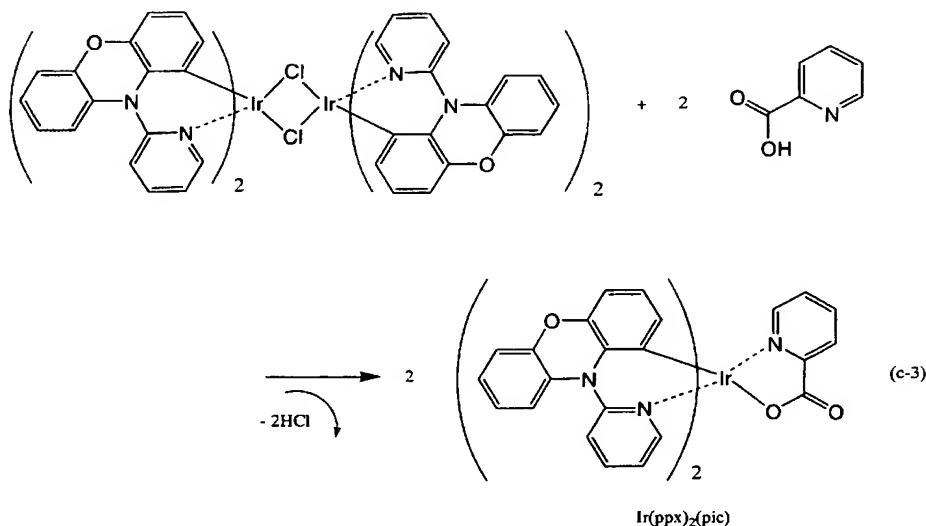
本合成例では、上記構造式 (16) で表される本発明の有機金属錯体 (略称:  $\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{pic})$ ) の合成法を例示する。原料としては、上述した合成例 2 のステップ 2 で得られる複核錯体  $[\text{Ir}(\text{ppx})_2\text{Cl}]_2$  を用いた。

### 【0114】

まず、2-エトキシエタノール 30 ml を溶媒として、 $[\text{Ir}(\text{ppx})_2\text{Cl}]_2$  を 1.00 g、ピコリン酸 (pic) を 0.25 g、炭酸ナトリウムを 0.71 g 混合し、窒素雰囲気下にて 14 時間還流した。次に、得られた固体を、水、エタノール、エーテル溶媒にて洗浄することにより、本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{pic})$  を得た (黄色粉末、収率 72%)。合成スキームの概要を下記 (c-3) に示す。

### 【0115】

#### 【化 28】



### 【0116】

また、得られた本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{pic})$  の分解温度  $T_d$  を TG-DTA により測定したところ、 $T_d = 396^\circ\text{C}$  であり、比較例 1 の  $\text{Ir}(\text{tpy})_2(\text{acac})$  ( $T_d = 298^\circ\text{C}$ ) に比べ、良好な耐熱性を示すこ

とがわかった。また、収率も上記の通り良好であり、コスト的にも優れている。

#### 【0117】

次に、 $\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{pic})$  のジクロロメタン中における吸収スペクトルおよび発光スペクトル（フォトルミネッセンス）を図9に示す。本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{pic})$  は 226 nm、314 nm、338 nm および 396 nm に吸収ピークを有しており、合成例1と同様、オルトメタル錯体等によく見られる有機金属錯体特有の吸収スペクトルを呈していた。また、発光スペクトルは 551 nm にピークを有しており、黄緑色発光であった。

#### 【0118】

##### [実施例1]

本実施例では、合成例2で得られた上記構造式(15)で表される本発明の有機金属錯体 ( $\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{acac})$ ) を発光体として用いた電界発光素子を、具体的に例示する。素子構造としては図1に示す構造を適用し、成膜法としては真空蒸着法を用いた。

#### 【0119】

まず、陽極101としてインジウム錫酸化物 (ITO) が 110 nm 成膜された基板100を用いる。陽極101の大きさは2mm角とした。この陽極101上にホール注入層111として  $\text{CuPc}$  を 20 nm 成膜し、次いでホール輸送層112として  $\alpha\text{-NPD}$  を 30 nm 成膜した。

#### 【0120】

さらに、CBPと  $\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{acac})$  とを共蒸着することにより、ホール輸送層112の上に発光層113を30nm成膜した。なお、この時、 $\text{Ir}(\text{ppx})_2(\text{acac})$  が発光層113中に約8wt%含まれるように蒸着レートを調整した。

#### 【0121】

次に、ホールブロッキング層114としてBCPを10nm、電子輸送層115として  $\text{Alq}_3$  を 20 nm、順次成膜した。以上が電界発光層102に相当する。最後に、フッ化カルシウムを2nm、アルミニウムを100nm成膜することで、陰極103とした。

## 【0122】

図10に、本実施例の素子特性を示す。図10(a)は輝度－電圧特性、図10(b)は輝度－電流密度特性、図10(c)は電流効率－輝度特性である。この素子は、7.0Vの電圧を印加することにより0.694mA/cm<sup>2</sup>の電流密度で電流が流れ、118cd/m<sup>2</sup>の輝度で発光した。また、この時の電流効率は17.0cd/Aであり、一重項励起状態からの発光（蛍光）を利用した電界発光素子を優に上回る高効率が得られた。これは、本発明の電界発光素子が三重項励起状態からの発光（燐光）を示しているためと考えられる。

## 【0123】

図11に、本実施例の電界発光素子の発光スペクトルを示す。図11に示すとおり、約520nmにピークを有する緑色発光であった。これは、図8に示した溶液中のIr(ppx)<sub>2</sub>(acac)の発光スペクトルとほぼ一致しており、本実施例においてIr(ppx)<sub>2</sub>(acac)が発光していることを示唆している。なお、CIE色度座標は、(x, y) = (0.27, 0.60)であった。

## 【0124】

## [実施例2]

本実施例では、画素部に本発明の電界発光素子を有する発光装置について図4を用いて説明する。なお、図4(A)は、発光装置を示す上面図、図4(B)は図4(A)をA-A'で切断した断面図である。点線で示された401は駆動回路部（ソース側駆動回路）、402は画素部、403は駆動回路部（ゲート側駆動回路）である。また、404は封止基板、405はシール剤であり、シール剤405で囲まれた内側407は、空間になっている。

## 【0125】

なお、408はソース側駆動回路401及びゲート側駆動回路403に入力される信号を伝送するための配線であり、外部入力端子となるFPC（フレキシブルプリントサーキット）409からビデオ信号、クロック信号、スタート信号、リセット信号等を受け取る。なお、ここではFPCしか図示されていないが、このFPCにはプリント配線基盤（PWB）が取り付けられていても良い。本明細

書における発光装置には、発光装置本体だけでなく、それにFPCもしくはPWBが取り付けられた状態をも含むものとする。

#### 【0126】

次に、断面構造について図4(B)を用いて説明する。基板410上には駆動回路部及び画素部が形成されているが、ここでは、駆動回路部であるソース側駆動回路401と、画素部402が示されている。

#### 【0127】

なお、ソース側駆動回路401はnチャネル型TF T 423とpチャネル型TF T 424とを組み合わせたCMOS回路が形成される。また、駆動回路を形成するTF Tは、公知のCMOS回路、PMOS回路もしくはNMOS回路で形成しても良い。また、本実施の形態では、基板上に駆動回路を形成したドライバー一体型を示すが、必ずしもその必要はなく、基板上ではなく外部に形成することもできる。

#### 【0128】

また、画素部402はスイッチング用TF T 411と、電流制御用TF T 412とそのドレインに電氣的に接続された第1の電極413とを含む複数の画素により形成される。なお、第1の電極413の端部を覆って絶縁物414が形成されている。ここでは、ポジ型の感光性アクリル樹脂膜を用いることにより形成する。

#### 【0129】

また、カバレッジを良好なものとするため、絶縁物414の上端部または下端部に曲率を有する曲面が形成されるようにする。例えば、絶縁物414の材料としてポジ型の感光性アクリルを用いた場合、絶縁物414の上端部のみに曲率半径( $0.2\mu\text{m} \sim 3\mu\text{m}$ )を有する曲面を持たせることが好ましい。また、絶縁物414として、感光性の光によってエッチャントに不溶解性となるネガ型、或いは光によってエッチャントに溶解性となるポジ型のいずれも使用することができる。

#### 【0130】

第1の電極413上には、電界発光層416、および第2の電極417がそれ



ぞれ形成されている。ここで、陽極として機能する第1の電極413に用いる材料としては、仕事関数の大きい材料を用いることが望ましい。例えば、ITO（インジウムスズ酸化物）膜、インジウム亜鉛酸化物（IZO）膜、窒化チタン膜、クロム膜、タンゲステン膜、Zn膜、Pt膜などの単層膜の他、窒化チタンとアルミニウムを主成分とする膜との積層、窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜と窒化チタン膜との3層構造等を用いることができる。なお、積層構造とすると、配線としての抵抗も低く、良好なオーミックコンタクトがとれ、さらに陽極として機能させることができる。

#### 【0131】

また、電界発光層416は、蒸着マスクを用いた蒸着法、またはインクジェット法によって形成される。電界発光層416には、本発明の有機金属錯体をその一部に用いることとし、その他、組み合わせて用いることのできる材料としては、低分子系材料であっても高分子系材料であっても良い。また、電界発光層に用いる材料としては、通常、有機化合物を単層もしくは積層で用いる場合が多いが、本発明においては、有機化合物からなる膜の一部に無機化合物を用いる構成も含めることとする。

#### 【0132】

さらに、電界発光層416上に形成される第2の電極（陰極）417に用いる材料としては、仕事関数の小さい材料（Al、Ag、Li、Ca、またはこれらの合金MgAg、MgIn、AlLi、CaF<sub>2</sub>、またはCaN）を用いればよい。なお、電界発光層416で生じた光が第2の電極417を透過させる場合には、第2の電極（陰極）417として、膜厚を薄くした金属薄膜と、透明導電膜（ITO（酸化インジウム酸化スズ合金）、酸化インジウム酸化亜鉛合金（In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZnO）、酸化亜鉛（ZnO）等）との積層を用いるのが良い。

#### 【0133】

さらにシール剤405で封止基板404を素子基板410と貼り合わせるにより、素子基板401、封止基板404、およびシール剤405で囲まれた空間407に電界発光素子418が備えられた構造になっている。なお、空間407には、不活性気体（窒素やアルゴン等）が充填される場合の他、シール剤40

5で充填される構成も含むものとする。

#### 【0134】

なお、シール剤405にはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、これらの材料はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。また、封止基板404に用いる材料としてガラス基板や石英基板の他、FRP（Fiberglass-Reinforced Plastics）、PVF（ポリビニルフロライド）、マイラー、ポリエステルまたはアクリル等からなるプラスチック基板を用いることができる。

#### 【0135】

以上のようにして、本発明の電界発光素子を有する発光装置を得ることができる。

#### 【0136】

##### 〔実施例3〕

本実施例では、本発明の電界発光素子を有する発光装置を用いて完成させた様々な電気器具について説明する。

#### 【0137】

本発明の電界発光素子を有する発光装置を用いて作製された電気器具として、ビデオカメラ、デジタルカメラ、ゴーグル型ディスプレイ（ヘッドマウントディスプレイ）、ナビゲーションシステム、音響再生装置（カーオーディオ、オーディオコンポ等）、ノート型パーソナルコンピュータ、ゲーム機器、携帯情報端末（モバイルコンピュータ、携帯電話、携帯型ゲーム機または電子書籍等）、記録媒体を備えた画像再生装置（具体的にはデジタルビデオディスク（DVD）等の記録媒体を再生し、その画像を表示しうる表示装置を備えた装置）などが挙げられる。これらの電気器具の具体例を図5に示す。

#### 【0138】

図5（A）は表示装置であり、筐体5101、支持台5102、表示部5103、スピーカー部5104、ビデオ入力端子5105等を含む。本発明の電界発光素子を有する発光装置をその表示部5103に用いることにより作製される。なお、表示装置は、パソコン用、TV放送受信用、広告表示用などの全ての情報

表示用装置が含まれる。

【0139】

図5 (B) はノート型パーソナルコンピュータであり、本体5201、筐体5202、表示部5203、キーボード5204、外部接続ポート5205、ポインティングマウス5206等を含む。本発明の電界発光素子を有する発光装置をその表示部5203に用いることにより作製される。

【0140】

図5 (C) はモバイルコンピュータであり、本体5301、表示部5302、スイッチ5303、操作キー5304、赤外線ポート5305等を含む。本発明の電界発光素子を有する発光装置をその表示部5302に用いることにより作製される。

【0141】

図5 (D) は記録媒体を備えた携帯型の画像再生装置（具体的にはDVD再生装置）であり、本体5401、筐体5402、表示部A5403、表示部B5404、記録媒体（DVD等）読み込み部5405、操作キー5406、スピーカー部5407等を含む。表示部A5403は主として画像情報を表示し、表示部B5404は主として文字情報を表示するが、本発明の電界発光素子を有する発光装置をこれら表示部A、B5403、5404に用いることにより作製される。なお、記録媒体を備えた画像再生装置には家庭用ゲーム機器なども含まれる。

【0142】

図5 (E) はゴーグル型ディスプレイ（ヘッドマウントディスプレイ）であり、本体5501、表示部5502、アーム部5503を含む。本発明の電界発光素子を有する発光装置をその表示部5502に用いることにより作製される。

【0143】

図5 (F) はビデオカメラであり、本体5601、表示部5602、筐体5603、外部接続ポート5604、リモコン受信部5605、受像部5606、バッテリー5607、音声入力部5608、操作キー5609、接眼部5610等を含む。本発明の電界発光素子を有する発光装置をその表示部5602に用いることにより作製される。

**【0144】**

ここで、図5（G）は携帯電話であり、本体5701、筐体5702、表示部5703、音声入力部5704、音声出力部5705、操作キー5706、外部接続ポート5707、アンテナ5708等を含む。本発明の電界発光素子を有する発光装置をその表示部5703に用いることにより作製される。なお、表示部5703は黒色の背景に白色の文字を表示することで携帯電話の消費電力を抑えることができる。

**【0145】**

以上の様に、本発明の電界発光素子を有する発光装置の適用範囲は極めて広く、この発光装置をあらゆる分野の電気器具に適用することが可能である。

**【0146】****【発明の効果】**

本発明を実施することで、合成の容易な配位子を用いて収率良く得られる新規な有機金属錯体を提供することができる。また特に、耐熱性に優れた新規な有機金属錯体を提供することができる。

**【0147】**

また、前記有機金属錯体を用いて電界発光素子を作製することにより、発光効率の高い電界発光素子を提供することができる。さらには前記電界発光素子を用いて発光装置を作製することにより、消費電力の低い発光装置を提供することができる。

**【図面の簡単な説明】**

【図1】 実施の形態1における電界発光素子の素子構造を説明する図。

【図2】 実施の形態2における電界発光素子の素子構造を説明する図。

【図3】 実施の形態3における電界発光素子の素子構造を説明する図。

【図4】 発光装置について説明する図。

【図5】 電気器具について説明する図。

【図6】 本発明の有機金属錯体のUV-Vis吸収スペクトルを示す図。

【図7】 本発明の有機金属錯体の発光スペクトルを示す図。

【図 8】 本発明の有機金属錯体の UV-V i s 吸収スペクトルおよび発光スペクトルを示す図。

【図 9】 本発明の有機金属錯体の UV-V i s 吸収スペクトルおよび発光スペクトルを示す図。

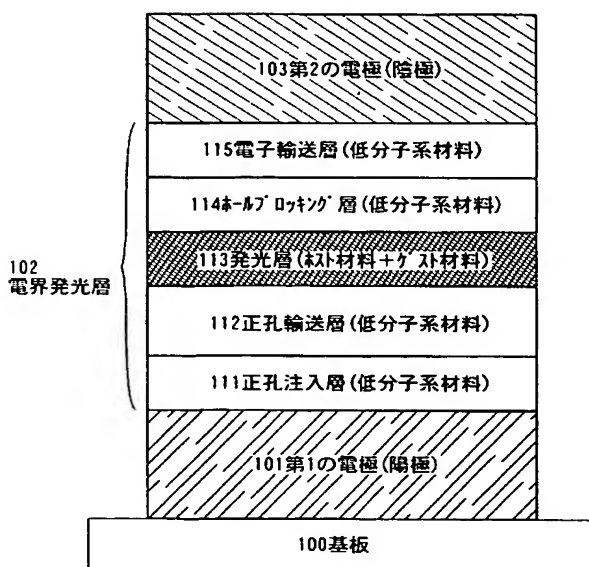
【図 1 0】 本発明の電界発光素子の特性を示す図。

【図 1 1】 本発明の電界発光素子の発光スペクトルを示す図。

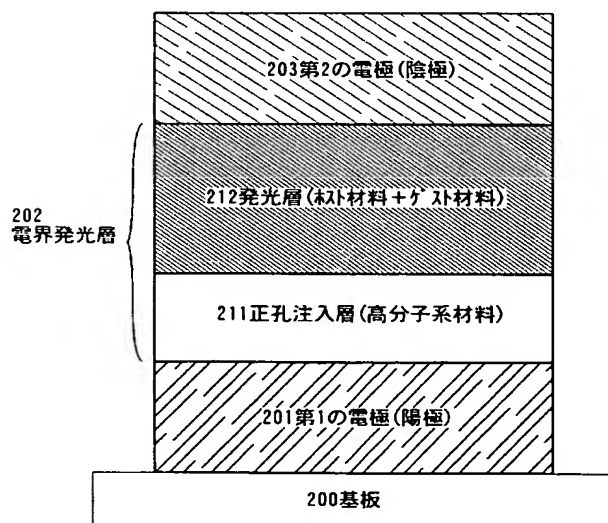
【書類名】

図面

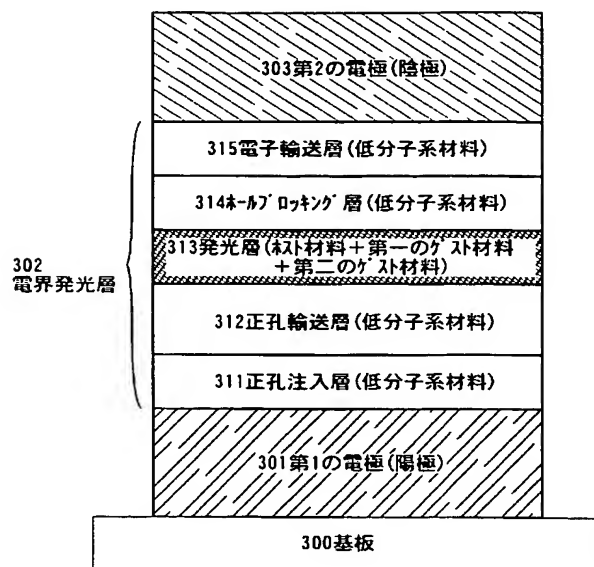
【図 1】



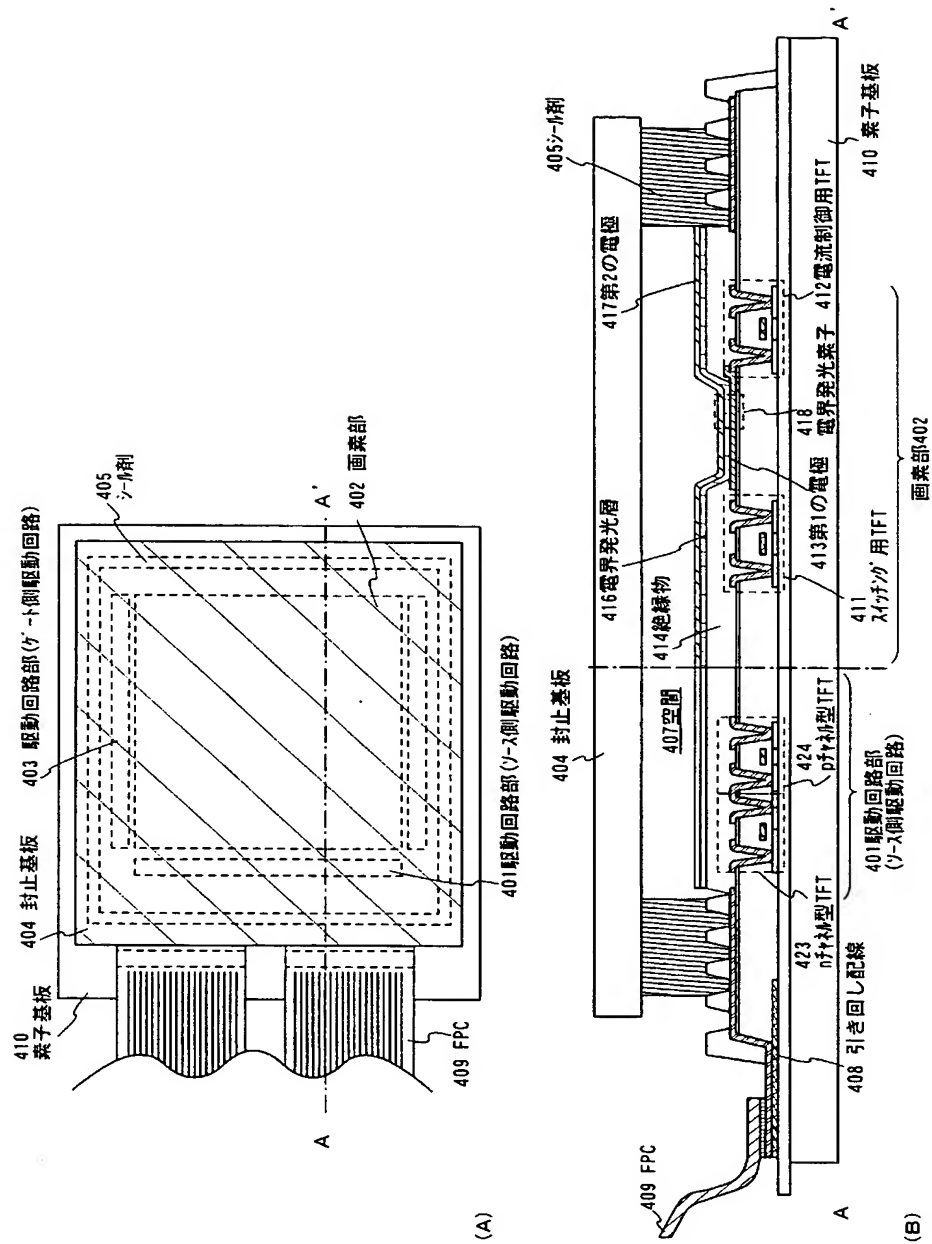
【図 2】



【図 3】

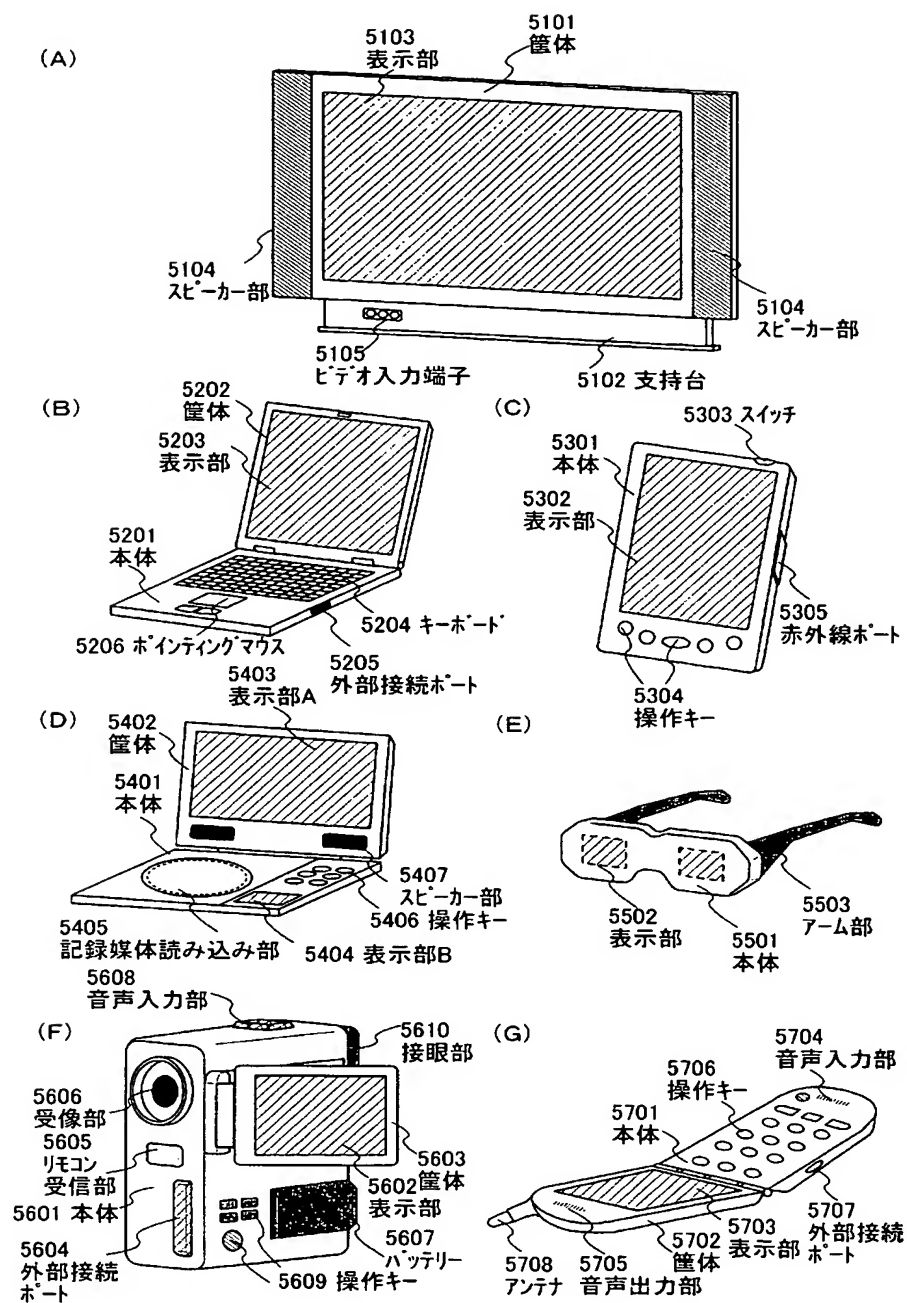


【図 4】

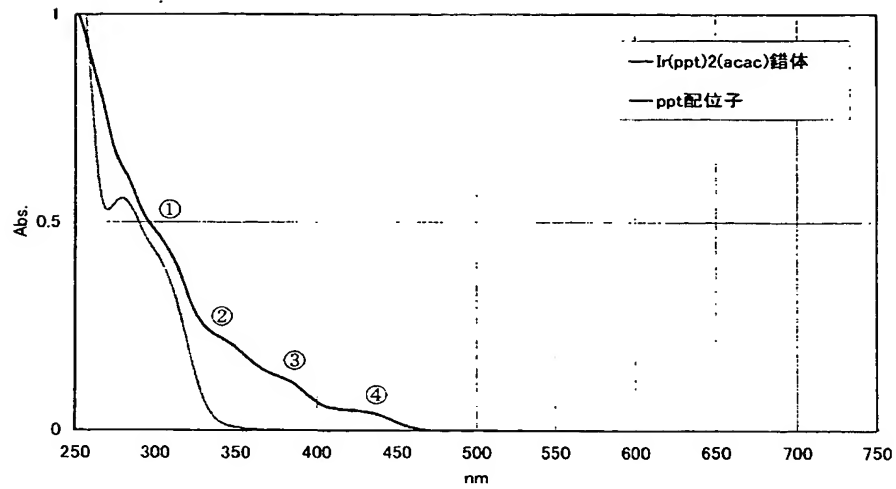




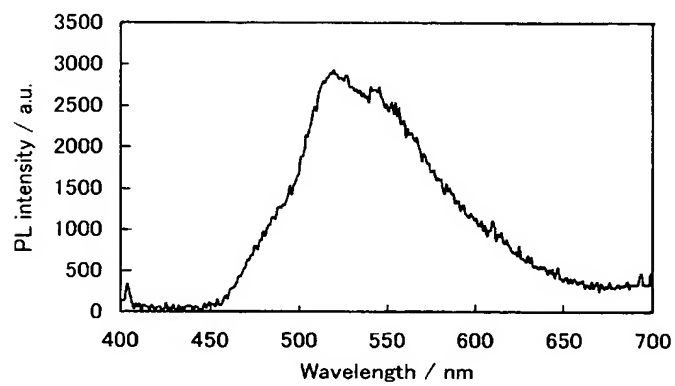
【図 5】



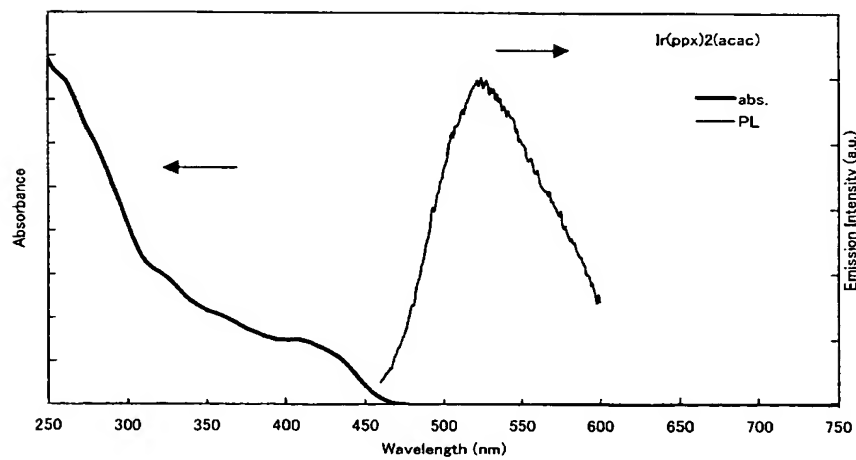
【図 6】



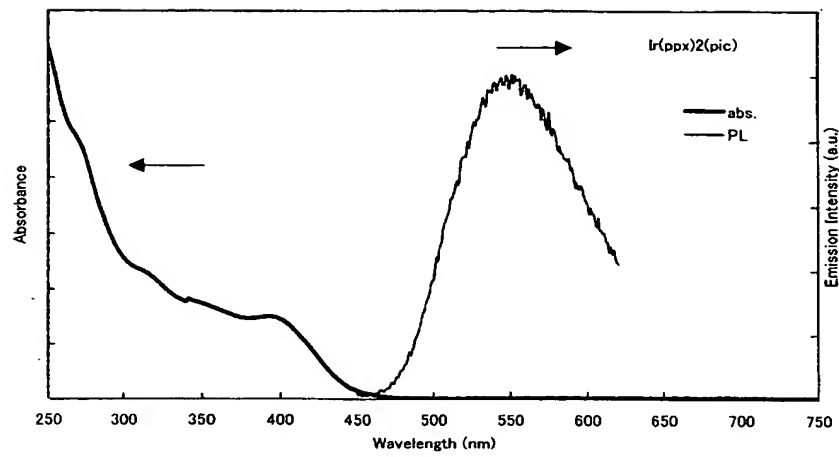
【図 7】



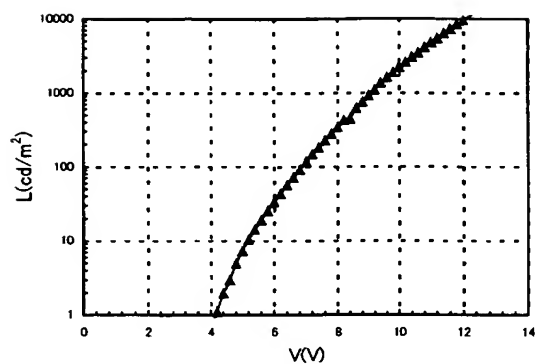
【図 8】



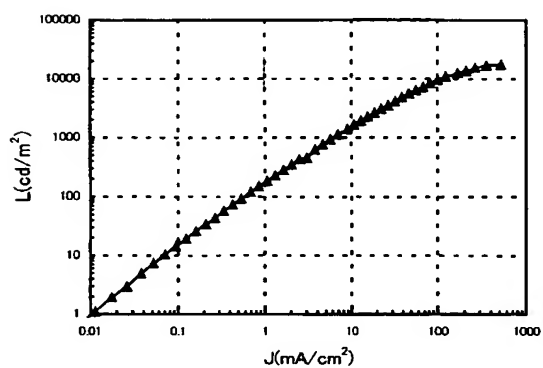
【図 9】



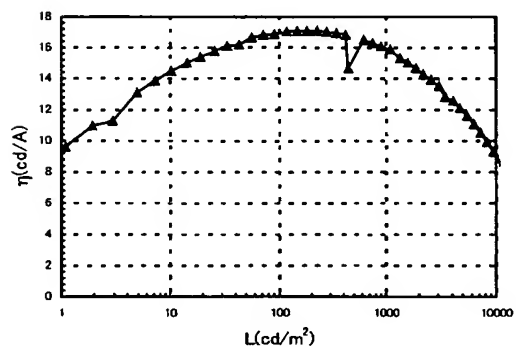
【図 10】



(a)

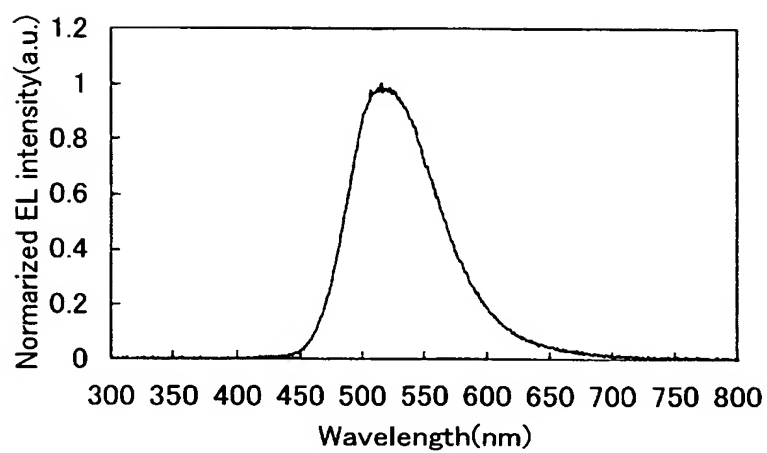


(b)



(c)

【図 11】



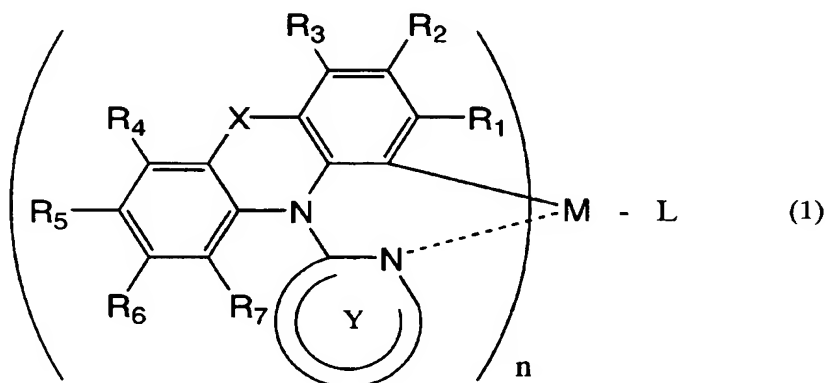
## 【書類名】 要約書

## 【要約】

【課題】 オルトメタル錯体に代表される有機金属錯体は燐光材料としての応用などが期待できるが、適用できる配位子の種類が少なく、錯体自体の収率も悪い。さらに、耐熱性にも問題がある。そこで本発明では、合成の容易な配位子を用いて収率良く得られる新規な有機金属錯体を提供することを課題とする。特に、耐熱性に優れた有機金属錯体を提供することを課題とする。また、前記有機金属錯体を用いて電界発光素子を作製することにより、発光効率の高い電界発光素子を提供することを課題とする。

【解決手段】 一般式〔化1〕で表される有機金属錯体を合成する。また、これを電界発光素子に適用する。

## 【化1】



特願 2 0 0 3 - 1 8 8 9 6 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 1 5 3 8 7 8 ]

1 . 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 1 7 日

[変更理由]

新規登録

住 所

神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地

氏 名

株式会社半導体エネルギー研究所